

Thèse de Doctorat

Jean-Baptiste Clavel

*Mémoire présenté en vue de l'obtention
du grade de Docteur de l'Ecole des Mines de Nantes
Sous le label de l'Université Nantes Angers Le Mans*

Discipline : Constituants élémentaires et physique théorique
Spécialité : Physique nucléaire
Laboratoire : SUBATECH

Soutenue le 30 novembre 2012

École doctorale : Matière, Molécules, Matériaux en Pays de la Loire

Thèse N° 2012 EMNA 0050

Étude de systèmes et scénarios électronucléaires double strate de transmutation des actinides mineurs en ADS

JURY

Rapporteurs :	M. Gilles BAN , Professeur ENSI Cean, LPC Caen Mme Annick BILLEBAUD , Directrice de recherche CNRS, LPSC Grenoble
Examineurs :	M. Bernd GRAMBOW , Professeur EM Nantes, SUBATECH Nantes M. Sylvain DAVID , Chargé de recherche CNRS, IPN Orsay
Invité :	M. Claude GARZENNE , Expert sénior de physique du cycle, EDF R&D SINETICS Clamart
Directeur de Thèse :	M Philippe EUDES , Professeur Université de Nantes, SUBATECH Nantes
Co-directeur de Thèse :	M. Nicolas THIOLLIÈRE , Chargé de recherche EM Nantes, SUBATECH Nantes M. Arnaud GUERTIN , Chargé de recherche CNRS, SUBATECH Nantes

Remerciements

En premier lieu, je souhaite remercier Philippe Eudes d'avoir accepté d'être mon directeur de thèse et d'avoir suivi au mieux mon parcours en s'impliquant au-delà du simple rôle administratif qu'il m'avait présenté au début de ma thèse. Je tiens également à remercier les membres de mon jury, Annick Billebaud, Gilles Ban, Sylvain David et Claude Garzenne, pour leur participation, leurs remarques et leurs nombreuses questions, ainsi que Bernd Grambow pour avoir présidé ma soutenance.

Mais, un travail de thèse reflète l'implication de toute une équipe. Mes premières pensées vont bien sûr vers Nicolas Thiollière dont l'investissement durant ces trois années m'a permis de mener à bien mon étude. Il m'a non seulement guidé dans mes recherches, mais il a également été au cœur de nombreuses discussions passionnantes dépassant largement le cadre de ma thèse. D'ailleurs comment s'appelle... ? Je m'excuse au passage auprès d'Agnès, Lola et Alice de l'avoir accaparer au cours des derniers mois de doctorat.

Je salue aussi Arnaud Guertin pour m'avoir accompagné en début et fin de thèse malgré les changements de directions qui ont eu lieu à mi-parcours. Son efficacité pour résoudre les questions administratives et l'ardeur avec laquelle il s'est appliqué à corriger mon manuscrit, méritent d'être soulignées. Je remercie donc sincèrement mes deux encadrants scientifiques de m'avoir permis de mener à bien mes travaux.

Je remercie Baptiste dont l'arrivée nous a donné une nouvelle dynamique et de nouvelles perspectives de travail. Son attention lors des dernières semaines m'a été d'un grand soutien. J'ai également une pensée particulière pour Anthony, qui même s'il a cru (comme d'autres d'ailleurs) que mon bureau était une succursale de la cafétéria, m'a permis de me changer un peu les idées et m'a surtout bien dépanné lors des mésaventures des dernières semaines. Je suis d'ailleurs désolé pour son PC et lui souhaite un bon courage pour sa dernière année de thèse.

Le reste des membres du groupe ERDRE m'a également encouragé au cours de ces trois années, chacun à leur manière. Je remercie notamment pour cela Muriel, Amanda, Frédéric, Lydie, Sandrine et Zakari.

Mes travaux sont également le fruit des réflexions et de nombreux échanges qui ont eu lieu

lors des réunions GEDEPEON et à l'IPN d'Orsay. Parmi ceux que je n'ai pas encore cité, je remercie notamment Baptiste L, Marc et Xavier pour l'enthousiasme dont ils ont fait preuve lors de nos rencontres.

Je ne peux pas oublier les doctorants que j'ai côtoyés au cours de ces trois ans à SUB-ATECH. Tout d'abord, ceux qui sont déjà docteurs. Ils m'ont accueilli et ont facilité mon intégration dans le laboratoire, mais également dans cette agréable ville de Nantes. J'ai donc une pensée pour ceux qui m'ont montré la voie et particulièrement pour Thibault dont je ne tiendrai pas rigueur d'être un supporter stéphanois, pour le toujours très calme Samuel, Tugdual l'homme au coude bionique et à la queue de cheval, Vincent le musicien en chenillette, le surnommé Eric aux tee-shirts toujours très poétiques et Van-Minh le kung-fu fighter.

Certains arrivés avec moi, m'ont accompagné durant tout mon parcours et m'ont permis de garder un œil ouvert sur le monde avec l'actualité brûlante de ces dernières années. Je garderai en mémoire les discours enflammés sur la révolution tunisienne d'Ahmed et une grande admiration pour le courage d'Abdul, qui a partagé mon bureau. Arriver à garder le cap, lorsque chaque jour, les nouvelles de son pays sont de plus en plus graves, demande une force exceptionnelle. Il n'a, de plus, jamais râlé de voir notre bureau se transformer en café du commerce. Je les remercie tous les deux, et espère que la fin de leur thèse se finira bien. Un radiochimiste vient également étoffer la liste. Francis n'a pas totalement réussi à me recruter pour son équipe de foot, mais m'a devancé en soutenant sa thèse deux semaines avant moi.

Il y a aussi ceux arrivés en cours de route, notamment Diego qui n'entendra plus mes blagues de mauvais goût sur les brésiliens, la discrète Diana et les doctorants du deuxième étage Alexis et Antoine. Je leur souhaite beaucoup de courage pour leurs rédactions car c'est à leur tour ! Puis, les dernières vagues m'ont permis de connaître Anaïs, Aurélien, Aziz, Benjamin, Benjamin, Charlotte, Guillaume, Jennifer, et Maxime... je leur souhaite une bonne continuation et de mener à bien leur travaux de thèse.

Lors de ces trois années de thèse, j'ai rencontré un grand nombre de personnes au sein du laboratoire ou à l'extérieur. Je souhaite remercier toutes les filles de l'administration, qui ont toujours répondu avec le sourire à toutes mes questions ou problèmes, avec une petite attention particulière pour mes voisines de bureau, Stéphanie et Sophie.

J'ai aussi une pensée pour les joueurs de foot avec lesquels je me suis défoulé, détendu... et travaillé mon physique et non la physique. Je ne les énumérerai pas tous, mais ils se reconnaîtront.

Il me faut aussi remercier ceux qui sont mes soutiens quelque soit la distance qui nous sépare et le temps qui passe. Je pense à mes amis qui m'accompagnent, m'enrichissent et sont toujours là lorsque j'ai besoin d'eux. Amis d'enfance, des scouts ou assimilés, de la fac, de Nantes ou d'ailleurs, je vous remercie chaleureusement car à votre manière vous avez contribué

à cette thèse.

Je ne peux oublier ma famille au sens large qui croit en moi. Ils m'ont encouragé dans mes choix et m'ont aidé à mener à bien mon projet. Une nouvelle fois, je ne citerai pas tout le monde, mais je me dois d'avoir une attention particulière pour mes parents sans qui je n'écirais pas ses mots. Je remercie donc ma mère dont la fierté qu'elle a de ses enfants n'a d'égal que l'amour qu'elle leur porte, et mon père, docteur en sociologie, qui m'a certainement inspiré lorsque j'ai décidé de faire une thèse et qui avec un dévouement sans faille, a eu la fastidieuse tâche de corriger mon manuscrit. J'ai également une pensée pour mes deux frères qui chacun à leur manière prennent soin du petit dernier.

Enfin, merci à celle qui est devenu ma femme et qui me supporte au quotidien. Elle a accepté de s'expatrier à Nantes pour ma thèse. Elle a vécu presque aussi intensément que moi ces derniers mois et a eu, elle aussi, l'immense bonheur de corriger mon manuscrit. Je ne la remercierai jamais assez pour son soutien, sa joie de vivre... en résumé d'être telle qu'elle est.

Merci à tous...

Table des matières

Remerciements	i
Liste des figures	xvi
Liste des tableaux	xxiii
Liste des abréviations	xxv
Introduction	1
1 Contexte énergétique et définitions	5
1.1 Contexte énergétique mondial et français	5
1.1.1 Situation énergétique mondiale	5
1.1.2 Situation énergétique française	10
1.2 Notions fondamentales de physique des réacteurs	11
1.2.1 Fonctionnement d'un réacteur nucléaire	11
1.2.2 Coefficient de multiplication	12
1.2.3 Puissance thermique du cœur et taux de combustion	13
1.2.4 Neutrons retardés et pilotage du cœur	13
1.2.5 Principales filières nucléaires	15
1.3 Déchets nucléaires en France	16
1.3.1 Déchets de très faible activité	17
1.3.2 Déchets de faible activité à vie longue	17
1.3.3 Déchets de faible et moyenne activité à vie courte	17
1.3.4 Déchets moyenne activité à vie longue	18
1.3.5 Déchets de haute activité à vie longue	18
1.3.6 Radiotoxicité	18
1.4 Cadre législatif de la gestion des déchets nucléaires en France	19
1.4.1 Loi de 1991	19
1.4.2 Loi de 2006	20

2	Transmutation des actinides mineurs et réacteurs sous-critiques	23
2.1	Actinides mineurs	23
2.2	Transmutation des actinides mineurs	26
2.2.1	Étude des sections efficaces des actinides mineurs	26
2.2.2	Spectre neutronique pour la transmutation	27
2.3	Réacteur sous-critique piloté par accélérateur - ADS	29
2.3.1	Réaction de spallation	29
2.3.2	Principe de fonctionnement d'un ADS	30
2.3.3	Influence de la source de neutrons	30
2.3.4	Histoire de l'ADS et expériences en cours	31
2.3.5	Le futur démonstrateur industriel européen EFIT	32
2.3.6	Augmentation du potentiel de transmutation d'un ADS	34
2.3.7	Concept ADS MUST	36
2.4	Scénarios électronucléaires double strate	37
2.4.1	Définitions	37
2.4.2	Scénarios et observables retenus	39
3	Outils de simulation et applications aux réacteurs sous-critiques	43
3.1	MCNP(X)	43
3.1.1	Principe	43
3.1.2	Source de particules	45
3.1.3	Base de données et modèles	46
3.2	MURE	47
3.2.1	Equation de Bateman	47
3.2.2	Principe d'évolution dans MURE	49
3.2.3	Interface graphique	50
3.2.4	Gestion du k_{eff}	50
3.2.5	Calcul couplé de neutronique et de thermo-hydraulique	52
3.3	ACDC	55
3.3.1	Principe de fonctionnement	55
3.3.2	Fichier d'entrée	56
3.3.3	Illustration du fonctionnement de ACDC	58
3.3.4	Comparaison MURE - ACDC	61
3.4	Code de simulation de scénario CLASS	64
3.4.1	Code de simulation de scénario	64
3.4.2	Principe de fonctionnement	65
3.4.3	Structure du programme	67
3.5	Calcul d'évolution d'un ADS	69
3.5.1	Problématique de la source externe	69

3.5.2	Simulation d'une sphère homogène	70
4	Dimensionnement d'un ADS MUST et caractérisation de son combustible	75
4.1	Introduction de la méthode	75
4.1.1	Notations	75
4.1.2	Gestion des assemblages du cœur sous-critique	77
4.1.3	Hypothèse de simulation d'évolution du cœur sous-critique	77
4.1.4	Présentation sommaire du protocole	78
4.2	Détermination du flux de matière à transmuter	81
4.3	Caractéristiques préliminaires de l'ADS MUST	82
4.4	Premier vecteur isotopique à l'équilibre	84
4.5	Dimensionnement	90
4.5.1	Géométrie des assemblages	90
4.5.2	Source de protons et cibles de spallation	92
4.5.3	Calcul de la densité du combustible	97
4.5.4	Dimensionnement du cœur sous-critique	98
4.5.5	Gestion du k_{eff} au cours de l'irradiation	103
4.5.6	Ajustement de la matrice inerte	109
4.5.7	Configurations des ADS MUST à caloporteur sodium et plomb	112
4.6	Deuxième combustible à l'équilibre	114
4.7	Détermination de la puissance thermique	121
4.7.1	Facteur de forme	121
4.7.2	Calcul couplé de neutronique et de thermo-hydraulique	124
4.7.3	Puissance de l'ADS MUST et flux neutronique dans le cœur	131
4.8	Détermination de l'intensité du faisceau	135
4.9	Troisième combustible à l'équilibre	140
4.10	Bilan du dimensionnement des concepts d'ADS MUST	147
4.10.1	ADS MUST à caloporteur plomb	147
4.10.2	ADS MUST à caloporteur sodium	148
4.10.3	Axes de travail à approfondir	148
5	Scénarios double strate à l'équilibre de transmutation des actinides mineurs	151
5.1	Évolution sur un cycle	151
5.1.1	Description de la simulation	151
5.1.2	Uranium et plutonium	152
5.1.3	Actinides mineurs	164
5.2	Évolution du k_{eff}	180
5.2.1	Avec assemblages de contrôle	180
5.2.2	Sans assemblage de contrôle	183
5.2.3	Augmentation de la réactivité	183

5.3	Caractéristiques des déchets produits	185
5.3.1	Radioatotoxicité	185
5.3.2	Puissance thermique	187
5.4	Étude simplifiée de scénarios	188
5.4.1	Composition du parc nucléaire	188
5.4.2	Hypothèses	189
5.4.3	Estimation du nombre d'ADS MUST pour le scénario de référence . . .	189
Conclusion		193
A Étude de sûreté		197
A.1	Fraction de neutrons retardés	197
A.2	Coefficient Doppler	199
A.3	Changement de densité et vidange du caloporteur	200
B Estimation de l'erreur d'une évolution globale du combustible		205
B.1	Propagation de l'erreur statistique	205
B.2	Évolution de l'ensemble du combustible ou par zone de flux neutronique	206
Bibliographie		217

Liste des figures

1.1	Répartition des 12 150 Mtep de la production énergétique primaire mondiale de 2009 [1]. La partie « Autres » comprend la géothermie, le solaire, l'éolien...	6
1.2	Répartition de la production d'électricité mondiale en 2009. La partie « Autres » regroupe la géothermie, le solaire, l'éolien, la combustion de déchets, les biocarburants...	7
1.3	Répartition de la production d'électricité Française en 2009. La partie « Autres » regroupe la combustion de déchets, les biocarburants, le solaire, la marée motrice...	10
1.4	Schéma de principe d'un réacteur nucléaire utilisant de l'eau comme caloporteur.	11
1.5	Classification française des déchets radioactifs [13].	16
2.1	Évolution temporelle de la radiotoxicité par ingestion ou inhalation du combustible utilisé d'un assemblage de REP à combustible UOX pour une puissance électrique de 1300 MW et un facteur de charge de 80 %. Tout le combustible est pris en compte dans la courbe noire. Les courbes rouges et bleues sont obtenues en retirant d'abord l'uranium et le plutonium, puis les actinides mineurs.	25
2.2	Sections efficaces des principaux actinides mineurs en fonction de l'énergie du neutron incident [10].	27
2.3	Schéma de principe de la réaction de spallation.	29
2.4	Schéma de principe d'un ADS	30
2.5	Flux neutronique radial normalisé par proton (NPS) d'un ADS simplifié. Les erreurs statistiques associées aux calculs sont reportées sur le graphique.	35
2.6	Schéma de l'ADS simplifié simulé pour obtenir la figure 2.5. À gauche la vue du plan axial et à droite la vue du plan radial.	35
2.7	Schéma de principe d'un ADS MUST à 3 cibles de spallation.	37
2.8	Schéma de principe d'un scénario double strate	40
2.9	Schéma de principe du scénario double strate étudié.	41
3.1	Schéma de principe d'une simulation MURE	49
3.2	Schéma de principe d'une simulation MURE avec gestion des barres de contrôle	51

3.3	Réactivité, d'un cœur d'ADS MUST à caloporteur sodium, en fonction de la position des barres de contrôle. Les carrés sont les points déterminés dans le cadre d'une simulation d'évolution effectuée avec le programme MURE. Les cercles correspondent à des calculs supplémentaires réalisés avec le code MCNPX, permettant d'illustrer cette partie, et la courbe est la fonction calculée avec la fonction 3.14.	52
3.4	Schéma de principe d'une simulation ACDC	56
3.5	Évolution sur 40 cycles soit 200 ans d'irradiation, des proportions isotopiques de l' ^{241}Am (en rouge) et de l' ^{243}Am (en bleu) d'une simulation ACDC.	59
3.6	Évolution sur 40 cycles soit 200 ans d'irradiation, des proportions isotopiques de l' ^{234}U (en vert), du ^{238}Pu (en rose) et du ^{240}Pu (en noir) d'une simulation ACDC.	59
3.7	Évolution des proportions isotopiques, sur les 2 derniers cycles des 40 simulés soit 200 ans, de l' ^{234}U (en vert), du ^{238}Pu (en rose), du ^{240}Pu (en noir), de l' ^{241}Am (en rouge) et de l' ^{243}Am (en bleu).	60
3.8	Évolution des proportions isotopiques, sur les 2 derniers cycles des 40 simulés soit 200 ans, de l' ^{234}U (en vert), du ^{238}Pu (en rose) et du ^{240}Pu (en noir).	60
3.9	Comparaison des calculs d'évolution de l' ^{238}U durant un cycle d'irradiation avec les codes MURE et ACDC. La ligne pleine est le résultat obtenu avec ACDC et la ligne discontinue avec des marqueurs est le résultat de la simulation de MURE.	62
3.10	Comparaison des calculs d'évolution des isotopes de plutonium durant un cycle d'irradiation, avec les codes MURE et ACDC. Les lignes pleines sont les résultats obtenus avec ACDC et les lignes discontinues avec des marqueurs sont les simulations de MURE.	62
3.11	Schéma du principe de fonctionnement de CLASS.	66
3.12	Schéma d'utilisation des bases de données.	68
3.13	Schéma de la géométrie simulée avec le programme MCNPX. La sphère extérieure en bleu est composée d'un mélange d' UO_2 et de H_2O . La sphère interne en rouge contient du plomb.	70
3.14	Flux neutronique par neutron créé en fonction de l'énergie des neutrons dans une boule homogène dont le k_{eff} est de 0.97. La courbe rouge en trait plein correspond au résultat d'un calcul réalisé par le code MCNPX avec une source critique et les pointillés noirs à une simulation utilisant une source fixe de proton de 1 GeV émis au centre du plomb situé dans la boule homogène. Les deux flux neutroniques sont renormalisés à partir du nombre de neutrons créés, NC , dans chacune des simulations.	71
3.15	Rapport des deux spectres de la figure 3.14 avec les erreurs statistiques associées.	72

3.16	Flux neutronique radial par neutron créé dans une boule homogène dont le k_{eff} est de 0.97. La courbe rouge en trait plein correspond au résultat d'un calcul réalisé par le code MCNPX avec une source critique et les pointillés noirs à une simulation utilisant une source fixe de proton de 1 GeV émis au centre du plomb situé dans la boule homogène. Les deux flux neutroniques sont renormalisés à partir du nombre de neutrons créés, NC , dans chacune des simulations.	72
4.1	Sections efficaces du MgO en fonction de l'énergie du neutron incident. La courbe noire correspond à la section efficace totale, la courbe bleue à la section efficace de capture radiative et la courbe discontinue rouge à la section efficace de diffusion élastique. Les valeurs sont issues de la base de données ENDF-B7 [10]	83
4.2	Conductivité thermique du MgO [67], du MOX [68], du NpO_2 [69], de l' AmO_2 [69] et du CmO_2 [69] en fonction de la température.	83
4.3	Évolution de la proportion isotopique de l' ^{241}Am et de l' ^{243}Am durant 40 cycles (200 ans) calculée avec le code ACDC pour la filière REP-Na5-1.	86
4.4	Évolution de la proportion isotopique de l' ^{234}U , du ^{238}Pu et du ^{240}Pu durant 40 cycles (200 ans) calculée avec le code ACDC pour la filière REP-Na5-1.	86
4.5	Deux derniers cycles de l'évolution de la proportion isotopique de l' ^{241}Am , de l' ^{243}Am , de l' ^{234}U , du ^{238}Pu et du ^{240}Pu durant 40 cycles (200 ans) calculée avec le code ACDC pour la filière REP-Na5-1.	87
4.6	Schéma d'un assemblage d'un ADS MUST à caloporteur sodium à gauche, d'un crayon de combustible au centre, et d'un assemblage d'un ADS MUST à caloporteur plomb à droite.	90
4.7	Nombre de neutrons créés par spallation divisé par le nombre de protons incidents en fonction de l'énergie de ceux-ci. Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs statistiques calculées par le code MCNPX. La cascade intranucléaire et l'évaporation du phénomène de spallation sont calculées respectivement avec les modèles Bertini et Dresner.	93
4.8	Nombre de neutrons créés par spallation divisé par le nombre de protons incidents et par leur énergie en fonction de l'énergie de ceux-ci. Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs statistiques calculées par le code MCNPX. La cascade intranucléaire et l'évaporation du phénomène de spallation sont calculées respectivement avec les modèles Bertini et Dresner.	94
4.9	Nombre de neutrons créés par spallation en fonction du rayon de la cible. Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs statistiques calculées par le code MCNPX. La cascade intranucléaire et l'évaporation du phénomène de spallation sont calculées respectivement avec les modèles Bertini et Dresner.	94

4.10	Profil axial du flux neutronique créé par spallation normalisé par proton source (NPS). Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs statistiques calculées par le code MCNPX. La cascade intranucléaire et l'évaporation du phénomène de spallation sont calculées respectivement avec les modèles Bertini et Dresner.	95
4.11	Nombre de neutrons créés par spallation en fonction de la longueur de la cible. Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs statistiques calculées par le code MCNPX. La cascade intranucléaire et l'évaporation du phénomène de spallation sont calculés respectivement avec les modèles Bertini et Dresner.	96
4.12	Schéma d'une cible de spallation d'un ADS MUST.	97
4.13	Masse volumique des UO_2 [74], NpO_2 [75], PuO_2 [74], AmO_2 [76], CmO_2 [76] et MgO [77] en fonction de la température.	97
4.14	Flux neutronique radial d'un ADS de grand rayon, à caloporteur plomb (en rouge) et sodium (en noir) des filières SFR-Pb3-1 et SFR-Na5-1. Le flux dans la zone de spallation est fixé à 0 afin d'observer uniquement le flux dans la zone de combustible.	99
4.15	Flux neutronique radial renormalisé d'un ADS de grand rayon à caloporteur sodium pour l'ensemble des filières étudiées dont les vecteurs isotopiques de noyaux lourds sont répertoriés dans les tableaux 4.5 et 4.6. Les valeurs sont données en unité arbitraire (U.A).	100
4.16	Flux neutronique radial renormalisé d'un ADS de grand rayon à caloporteur plomb pour l'ensemble des filières étudiées dont les vecteurs isotopiques de noyaux lourds sont répertoriés dans les tableaux 4.7 et 4.8. Les valeurs sont données en unité arbitraire (U.A).	100
4.17	Schéma explicatif pour la détermination des dimensions du cœur.	101
4.18	Exemple d'évolution du k_{eff} durant une irradiation de 5 ans, sans contrôle du cœur, pour les filières REP-Na5-1 et REP-Na5-3. La courbe bleue avec les marqueurs en forme de cercle correspond au réacteur transmutant seulement l'américium et en rouge avec les marqueurs carrés le système transmutant l'ensemble des actinides mineurs. Les barres d'erreur sont les erreurs statistiques calculées par le code MCNPX.	103
4.19	Gain neutronique en début G_{Di} (en bleu foncé à gauche) et fin G_{Fi} (en bleu clair au centre) de cycle d'irradiation pour les principaux isotopes de noyaux lourds. La valeur en rouge (à droite) est leur différence. Ces résultats sont obtenus pour la filière REP-Na5-3.	105
4.20	Gain neutronique en début G_{Di} (en bleu foncé à gauche) et fin G_{Fi} (en bleu clair au centre) de cycle d'irradiation pour les principaux isotopes de noyaux lourds. La valeur en rouge (à droite) est leur différence. Ces résultats sont obtenus pour la filière REP-Na5-1.	106

4.21	Schéma des assemblages de contrôle pour les ADS MUST à caloporteur sodium à gauche et à caloporteur plomb à droite. Schéma des barres de contrôle au centre.	109
4.22	Taux de fission par particule source en fonction de l'énergie du neutron incident pour les filières REP-Na5-3 et REP-Pb5-3 avec des combustibles sans matrice inerte.	111
4.23	Taux de capture par particule source en fonction de l'énergie du neutron incident pour les filières REP-Na5-3 et REP-Pb5-3 avec des combustibles sans matrice inerte.	112
4.24	Schéma d'un ADS MUST à caloporteur sodium.	112
4.25	Schéma d'un ADS MUST à caloporteur plomb.	113
4.26	Rapport α des sections efficaces obtenues avec le premier combustible divisé par le rapport α des section efficaces à 500 keV des bases de données ENDF-B7 [10]. Les rapports α correspondent à la division des sections efficaces de fission par celle de capture.	115
4.27	Rapport de la proportion isotopique molaire de noyaux lourds du deuxième combustible sur celle du premier combustible.	115
4.28	Flux neutronique normalisé par proton source (NPS) et intégré sur toute la hauteur du cœur d'un ADS MUST à caloporteur sodium. Les assemblages dont le contour est surligné en rouge, sont les assemblages de contrôle. Résultat obtenu pour une filière REP-Na5-1.	122
4.29	Flux neutronique normalisé par proton source et intégré sur toute la hauteur du cœur d'un ADS MUST sans assemblage de contrôle à caloporteur sodium. Résultat obtenu pour la filière REP-95Na5-1.	123
4.30	Point chaud du crayon en fonction de la position axiale pour des crayons dont la puissance est de 33 kW. Les carrés, les cercles et les losanges correspondent aux filières REP-Pb5-3, REP-Na5-3 et REP-95Na5-3. Les courbes sont les ajustements respectifs des résultats de chaque filière.	127
4.31	Température du point chaud du crayon en fonction de sa puissance pour les ADS MUST à caloporteur sodium. La température maximale est égale à 1653 K et celle de fonctionnement à 1570 K.	129
4.32	Température du point chaud du crayon en fonction de sa puissance pour les ADS MUST à caloporteur plomb. La température maximale est égale à 1653 K et celle de fonctionnement à 1570 K.	129
4.33	Température du point chaud du crayon en fonction de sa puissance pour les ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle. La température maximale est égale à 1653 K et celle de fonctionnement à 1570 K.	130

4.34	Puissance maximale des crayons en fonction du nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds. Les cercles et les carrés sont les valeurs obtenues pour les ADS MUST munis d'assemblages de contrôle à caloporteur sodium et plomb, les losanges correspondent aux résultats des réacteurs sans assemblage de contrôle. La droite est un ajustement linéaire de l'ensemble des valeurs. . . .	130
4.35	Puissance thermique des crayons en fonction du nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds. Les cercles et les carrés sont les valeurs obtenues pour les ADS MUST munis d'assemblage de contrôle à caloporteur sodium et plomb, et les losanges correspondent aux résultats des réacteurs sans assemblages de contrôle. Les droites sont les ajustements linéaires des valeurs par type d'ADS.	134
4.36	Schéma montrant la position d'un des crayons soumis au flux neutronique le plus élevé.	136
4.37	Intensité du faisceau principal de protons en fonction du nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds. Les carrés correspondent aux résultats obtenus avec un ADS refroidi par du plomb, les cercles et les losanges avec des systèmes à caloporteur sodium respectivement munis d'assemblages de contrôle et sans assemblage de contrôle. Les droites sont des ajustements linéaires de chacun des types de points.	138
4.38	Rapport de la proportion isotopique molaire de noyaux lourds du combustible à l'équilibre sur celle du deuxième combustible.	146
5.1	Évolution de l' ^{234}U au cours du cycle d'un ADS MUST.	153
5.2	Évolution du ^{238}Pu au cours du cycle d'un ADS MUST.	154
5.3	Évolution du ^{239}Pu au cours du cycle d'un ADS MUST.	155
5.4	Évolution du ^{240}Pu au cours du cycle d'un ADS MUST.	156
5.5	Taux de capture du ^{238}Pu et somme des taux de capture et fission du ^{239}Pu pour différentes filières.	158
5.6	Évolution de l' ^{241}Am au cours du cycle d'un ADS MUST.	165
5.7	Évolution de l' ^{243}Am au cours du cycle d'un ADS MUST.	166
5.8	Évolution du ^{237}Np au cours du cycle d'un ADS MUST.	167
5.9	Évolution du ^{244}Cm au cours du cycle d'un ADS MUST.	168
5.10	Évolution du ^{245}Cm au cours du cycle d'un ADS MUST avec assemblages de contrôle.	169
5.11	Évolution du ^{245}Cm au cours du cycle d'un ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle.	170

5.12	Masse annuelle transmutée en fonction de la puissance thermique de l'ADS MUST pour les différentes filières. Les cercles et les carrés sont les valeurs obtenues pour les ADS MUST munis d'assemblages de contrôle à caloporteur sodium et plomb, les losanges correspondent aux résultats des réacteurs sans assemblage de contrôle. La droite est un ajustement linéaire de l'ensemble des valeurs.	179
5.13	Évolution du coefficient de multiplication au cours de l'irradiation d'un ADS MUST à caloporteur sodium avec des assemblages de contrôle.	181
5.14	Évolution du coefficient de multiplication au cours de l'irradiation d'un ADS MUST à caloporteur plomb avec des assemblages de contrôle.	181
5.15	Évolution de la longueur d'insertion des assemblages de contrôle au cours de l'irradiation des ADS MUST à caloporteur sodium.	182
5.16	Évolution de la longueur d'insertion des assemblages de contrôle au cours de l'irradiation des ADS MUST à caloporteur plomb.	182
5.17	Évolution du coefficient de multiplication au cours de l'irradiation d'un ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle.	183
5.18	Gain neutronique en début G_{Di} (en bleu foncé à gauche) et fin G_{Fi} (en bleu clair au centre) de cycle d'irradiation pour les principaux isotopes de noyaux lourds. La valeur en rouge (à droite) est leur différence. Ces résultats sont obtenus pour la filière REP-Na5-3.	184
5.19	Gain neutronique en début G_{Di} (en bleu foncé à gauche) et fin G_{Fi} (en bleu clair au centre) de cycle d'irradiation pour les principaux isotopes de noyaux lourds. La valeur en rouge (à droite) est leur différence. Ces résultats sont obtenus pour la filière REP-Na5-1.	185
5.20	Évolution de la radiotoxicité au cours du temps, des déchets ultimes du combustible usé d'un ADS MUST des filières REP-95Na-1, REP-95Na-3, SFR-95Na-1 et SFR-95Na-3.	186
5.21	Évolution de la puissance thermique au cours du temps, des déchets ultimes du combustible usé d'un ADS MUST des filières REP-95Na-1, REP-95Na-3, SFR-95Na-1 et SFR-95Na-3.	188
A.1	Coefficient de multiplicité en fonction du pourcentage de la densité du caloporteur en fonctionnement normal, d'un ADS MUST à caloporteur sodium en début de cycle, pour différentes filières.	201
A.2	Coefficient de multiplicité en fonction du pourcentage de la densité du caloporteur en fonctionnement normal, d'un ADS MUST à caloporteur plomb en début de cycle, pour différentes filières.	202
B.1	Évolutions de la masse du ^{238}Pu en fin de cycle obtenues avec dix graines de nombres aléatoires différentes.	205

B.2	Évolutions de la masse d' ^{241}Am en fin de cycle obtenues avec dix graines de nombres aléatoires différentes.	206
B.3	Flux neutronique normalisé par proton source et intégré sur toute la hauteur du cœur de l'ADS MUST de la filière REP-95Na5-3.	207

Liste des tableaux

1.1	Pourcentage de la consommation énergétique mondiale et population par région.	6
1.2	Production électronucléaire par pays et pourcentage de la production électronucléaire mondiale en 2009.	7
1.3	Réserves et consommations des ressources fossiles et d'uranium. L'estimation de la durée d'exploitation est effectuée à partir des consommations de chacune des ressources supposées constantes au cours du temps. Les réserves de ressources fossiles sont les quantités prouvées fin 2011 et la consommation est celle de 2011. Pour l'uranium, sont prises en compte uniquement les réserves assurées et à faible coût (130 \$ par kg d'uranium). La valeur de la consommation est celle de 2010.	8
1.4	Le nombre moyen de neutrons total $\bar{\nu}_{Tot}$ et retardé $\bar{\nu}_r$ émis par fission produite par un neutron de 10^{-5} eV. β_r est la proportion de neutrons retardés en %. . . .	14
2.1	Périodes des principaux actinides mineurs présents dans le combustible nucléaire usé et facteurs de dose par ingestion ou inhalation associés.	24
2.2	Rapports α dans un REP et un RNR.	28
2.3	Taux de disparition Γ_D et de fission globale Γ_{fg} pour des irradiations standards en REP et RNR.	28
2.4	Masses isotopiques des actinides mineurs produits en REP et en SFR multi-recyclant le plutonium, après 5 ans de refroidissement [33] [38]. Les « - » signifient que les masses sont respectivement inférieures à 0.0001 et 0.001 pour les colonnes « REP » et « SFR ».	40
3.1	Proportions molaires des noyaux lourds du combustible en début de cycle, de l'assemblage SFR simulé pour comparer ACDC et MURE.	61
3.2	Proportions molaires finales de l' ^{238}U et de plutonium du combustible de l'assemblage SFR simulé avec ACDC et MURE. Les résultats sont normalisés par la somme des quantités des isotopes considérés.	63

3.3	Écarts absolus sur les proportions molaires finales de l' ^{238}U et de plutonium simulés avec ACDC en faisant varier les sections efficaces ou le flux. Seul le paramètre étudié est modifié pour faire ces comparaisons. Les sections efficaces sont extraites de la simulation MURE en début et en fin de cycle, de même que le flux. Les résultats sont normalisés par la somme des quantités des isotopes considérés.	63
3.4	Composition molaire de la sphère externe.	70
4.1	Code de description des filières d'ADS MUST	76
4.2	Proportions molaires (en %) des actinides mineurs produits par une strate de REP ou de SFR multi-recyclant le plutonium (tableau 2.4) et destinés à la transmutation en ADS MUST.	81
4.3	Caractéristiques préliminaires des ADS MUST disponibles. Les options soulignées correspondent à celles utilisées dans cette étude. La durée d'irradiation de 3 ans n'est pas abordée pour les réacteur à caloporteur sodium, tout comme 7 ans pour ceux au plomb.	84
4.4	Paramètres d'entrée du code ACDC fixés pour tous les ADS lors du calcul du premier combustible.	85
4.5	Premier vecteur isotopique de noyaux lourds pour le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Proportion isotopique molaire des noyaux lourds présents à plus de 1 %. Les « - » signifient que la proportion de l'isotope est inférieure à 1 %.	88
4.6	Premier vecteur isotopique de noyaux lourds pour le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Proportion isotopique molaire des noyaux lourds présents à plus de 1 %. Les « - » signifient que la proportion de l'isotope est inférieure à 1 %.	88
4.7	Premier vecteur isotopique de noyaux lourds pour le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Proportion isotopique molaire des noyaux lourds présents à plus de 1 %. Les « - » signifient que la proportion de l'isotope est inférieure à 1 %.	89
4.8	Premier vecteur isotopique de noyaux lourds pour le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Proportion isotopique molaire des noyaux lourds présents à plus de 1 %. Les « - » signifient que la proportion de l'isotope est inférieure à 1 %.	89
4.9	Composition en pourcentage molaire des aciers simulés pour les structures d'assemblages et pour les gaines des crayons. Les éléments, dont la composition isotopique naturelle est prise en compte, sont notés « naturel ».	91
4.10	Caractéristiques thermo-hydrauliques des ADS MUST à caloporteur sodium et plomb.	92

4.11 Proportions molaires des isotopes composant l'eutectique Pb-Bi utilisé comme cible de spallation.	92
4.12 Coefficients de dimensionnement pour la configuration finale des ADS MUST à caloporteur sodium à gauche et plomb à droite. N_{Ass} est le nombre d'assemblages dans la zone combustible.	102
4.13 Nombre de mole de MgO (N_{MgO}) pour une mole de noyaux lourds dans le premier combustible des ADS MUST à caloporteur sodium à gauche et refroidis au plomb à droite.	110
4.14 Principales caractéristiques des ADS MUST à caloporteur sodium et plomb . .	113
4.15 Deuxième combustible proche de l'équilibre des ADS MUST avec assemblages de contrôle et à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et proportion isotopique des noyaux dans une mole de noyaux lourds.	117
4.16 Deuxième combustible proche de l'équilibre des ADS MUST avec assemblages de contrôle et à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et proportion isotopique des noyaux dans une mole de noyaux lourds.	118
4.17 Deuxième combustible proche de l'équilibre des ADS MUST avec assemblages de contrôle et à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et proportion isotopique des noyaux dans une mole de noyaux lourds.	119
4.18 Deuxième combustible proche de l'équilibre des ADS MUST avec assemblages de contrôle et à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et proportion isotopique des noyaux dans une mole de noyaux lourds.	120
4.19 Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds dans le deuxième combustible des ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle.	121
4.20 Facteur de forme des différentes filières étudiées. Les filières composées d'ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle à gauche, avec assemblages de contrôle au centre et à droite celles dont les ADS MUST sont refroidis au plomb.	123
4.21 Nombre de mole de MgO (N_{MgO}) pour une mole de noyaux lourds et puissance maximale de fonctionnement des crayons de combustible P_{MaxC} des différentes filières.	128
4.22 Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds N_{MgO} , facteur de forme Γ_{FF} , flux neutronique et puissance des ADS MUST pour les différentes filières.	133

4.23	Moyennes des énergies déposées dans les trois crayons soumis au flux maximal E_{DepC} ($MeV \cdot proton^{-1}$), intensité du faisceau de proton principal I , énergie déposée dans le cœur E_T ($GeV \cdot proton^{-1}$) et puissance thermique P_{th} des différentes filières. Les erreurs statistiques relatives de E_{DepC} et E_T sont respectivement de l'ordre de 0.02 % et inférieures à 0.01 %. L'erreur sur I donnée dans le tableau est uniquement liée à l'erreur statistique de E_{DepC}	137
4.24	Troisième combustible à l'équilibre des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et pour les autres noyaux proportion isotopique dans une mole de noyaux lourds.	141
4.25	Troisième combustible à l'équilibre des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et pour les autres noyaux proportion isotopique dans une mole de noyaux lourds.	142
4.26	Troisième combustible à l'équilibre des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et pour les autres noyaux proportion isotopique dans une mole de noyaux lourds.	143
4.27	Troisième combustible à l'équilibre des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et pour les autres noyaux proportion isotopique dans une mol de noyaux lourds.	144
4.28	Troisième combustible à l'équilibre des ADS MUST à caloporteur Na et sans assemblage de contrôle transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et pour les autres noyaux proportion isotopique dans une mole de noyaux lourds.	145
5.1	Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.	159
5.2	Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (7 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.	159

- 5.3 Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau. 160
- 5.4 Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (7 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau. 160
- 5.5 Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (3 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau. 161
- 5.6 Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau. 161
- 5.7 Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (3 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau. 162
- 5.8 Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau. 162

- 5.9 Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST sans assemblage de contrôle et à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau. 163
- 5.10 Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST sans assemblage de contrôle et à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau. 163
- 5.11 Masses en début (m_i) et fin (m_f) de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement) des actinides mineurs dans le combustible des ADS MUST des filières REP-Na5-1, REP-Na5-3, REP-Na7-1 et REP-Na7-3. La colonne « Variation » est la différence entre les deux masses. 171
- 5.12 Masses en début (m_i) et fin (m_f) de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement) des actinides mineurs dans le combustible des ADS MUST des filières SFR-Na5-1, SFR-Na5-3, SFR-Na7-1 et SFR-Na7-3. La colonne « Variation » est la différence entre les deux masses. 172
- 5.13 Masses en début (m_i) et fin (m_f) de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement) des actinides mineurs dans le combustible des ADS MUST des filières REP-Pb3-1, REP-Pb3-3, REP-Pb5-1 et REP-Pb5-3. La colonne « Variation » est la différence entre les deux masses. 173
- 5.14 Masses en début (m_i) et fin (m_f) de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement) des actinides mineurs dans le combustible des ADS MUST des filières SFR-Pb3-1, SFR-Pb3-3, SFR-Pb5-1 et SFR-Pb5-3. La colonne « Variation » est la différence entre les deux masses. 174
- 5.15 Masses en début (m_i) et fin (m_f) de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement) des actinides mineurs dans le combustible des ADS MUST des filières REP-95Na5-1, REP-95Na5-3, SFR-95Na5-1 et SFR-95Na5-3. La colonne « Variation » est la différence entre les deux masses. 175

5.16	Bilan des masses d'actinides mineurs produites et transmutes au cours du cycle pour l'ensemble des filières étudiées. La colonne « Différences » contient le résultat de la différence entre la masse transmutée et la masse produite. Les valeurs de la colonne « Annuelles » sont celles de la colonnes « Différences » divisées par la durée d'irradiation. La colonne « Normalisées » correspond aux masse annuelles transmutes divisées par la puissance de l'ADS.	177
5.17	Bilan des masses annuelles d'actinides mineurs produites et transmutes au cours du cycle pour les filières.	190
5.18	Masses annuelles d'actinides mineurs produites et nombre d'ADS MUST nécessaire pour les transmuter suivant la filière mise en place.	190
A.1	Taux de neutrons retardés β_{eff} pour des ADS MUST utilisant le combustible de différentes filières en début de cycle.	198
A.2	Variation du coefficient de multiplication et les erreurs associées en pcm par K d'ADS MUST en début de cycle pour différentes filières.	200
A.3	Exemple de la répartition des interactions neutroniques et du nombre moyen de neutrons émis par fission pour différents pourcentages de densité du caloporteur d'un ADS MUST à caloporteur sodium en début de cycle.	203
A.4	Exemple de la répartition des interactions neutroniques et du nombre moyen de neutrons émis par fission pour différents pourcentages de densité du caloporteur d'un ADS MUST à caloporteur plomb en début de cycle.	203
B.1	Masses en fin de cycle des isotopes les plus abondants dans le combustible d'un ADS MUST de la filière REP-95Na5-3. Les masses obtenues en définissant 3 zones de flux neutroniques sont notées m_Z et celles obtenues avec un calcul d'évolution globale du cœur m_G . La dernière colonne est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en fin de cycle sont recensés dans ce tableau.	209

Liste des abréviations

ACDC	Actinide Code for Depletion Calculation
ADS	Accelerator Driven System
ADS EFIT	ADS European Facility for Industrial Transmutation
ADS MUST	ADS MULTiple Spallation Target
ASTRID	Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration
BATH	Basic Approach of Thermal Hydraulics
BREST	Réacteur rapide à sûreté passive avec caloporteur plomb (traduit du russe : Bistrii Reactor Estesvennoy bezopasnosti so Svintsovim Teplonositelem)
CERCER	CERamic-CERamic
CERN	Centre Européen de Recherche Nucléaire
CEA	Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
CLASS	Core Library for Advanced Scenario Simulation
CNE	Commission Nationale d'Évaluation
CNEF	Commission Nationale d'Évaluation du Financière
CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique
COSI	COde de SIMulation
COBRA	Coolant Boiling in Rod Arrays
EUROTRANS	EUROpean Research Programme for the TRANSmutation of High Level Nuclear Waste in an Accelerator Driven System
ENDF	Evaluated Nuclear Data File
EPR	European Pressurized Reactor
ERDRE	Experimental Research on Data Reactor and Energy
FREYA	Fast Reactor Experiments for hYbrid Applications
GIF	Generation IV International Forum
GFR	Gas-cooled Fast Reactor
GUINEVERE	Generation of Uninterrupted Intense NEutrons at the lead VENUS REactor
IN2P3	Institut national de physique nucléaire et de physique des particules
IPN	Institut de Physique Nucléaire

JEFF	Joint Evaluated Fission and Fusion
JENDL	Japanese Evaluated Nuclear Data Library
JEPN	Jour Équivalent Puissance Nominale
LFR	Lead-cooled Fast Reactor
LPSC	Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie
MCNP	Monte Carlo N-Particle
MCNPX	Monte Carlo N-Particle eXtended
MEGAPIE	MEGAwatt Pilot Experiment
MOX	Mélange d'OXides
MSR	Molten Salt Reactor
MURE	MCNP Utility for Reactor Evolution
MYRRHA	Multi-purpose hYbrid Research Reactor for High-tech Applications
OCDE	Organisation de Coopération et de Développement Économiques
PCRD	Programme Cadre de Recherche et Développement
PF	Produit de Fission
REP	Réacteurs à Eau Pressurisée
RNR	Réacteur à Neutrons Rapides
SCK-CEN	Centre d'Étude de l'Énergie Nucléaire
SCWR	SuperCritical Water-cooled Reactor
SFR	Sodium-cooled Fast Reactor
SUBATECH	Laboratoire de physique SUBAtomique et des TECHnologies associées
tep	Tonne équivalent pétrole
VHTR	Very-High-Temperature Reactor

Introduction

La production énergétique est aujourd'hui au cœur du débat public. Les problématiques environnementales et d'épuisement des ressources fossiles demandent la réalisation d'une transition des modes de production. La place prépondérante prise par les technologies utilisant des combustibles fossiles pourrait donc diminuer au profit de types de production alternatifs.

La production d'électricité d'origine nucléaire peut potentiellement répondre à une partie des besoins en électricité avec une relative indépendance aux énergies fossiles. Cependant, cette technologie implique une attention particulière à la sûreté des installations et une réflexion sur la gestion des déchets radioactifs.

L'État français a considérablement investi sur une production d'électricité d'origine nucléaire dès le début des années 60. Au cours des années 80, la question de la gestion des déchets radioactifs émerge au niveau national. Alors, une première loi, appelée communément « loi Bataille », est votée en 1991 et fixe les orientations des recherches relatives à la gestion des déchets radioactifs de haute activité et à vie longue. À l'issue de quinze années d'études, un premier bilan a été réalisé et un nouveau cadre a été défini par la loi du 28 Juin 2006.

L'un des axes de recherche défini par ces lois s'intitule « séparation et transmutation des éléments radioactifs à vie longue ». Les recherches réalisées dans ce cadre, sous la direction du CEA (Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives), demande la remise au parlement, en 2012, d'une évaluation scientifique sur la séparation poussée des éléments radioactifs à vie longue, contenus dans les déchets nucléaires, ainsi que sur leur transformation en des éléments moins nocifs à long terme.

Les actinides mineurs sont les principaux contributeurs à la radioactivité des déchets nucléaires au-delà de quelques centaines d'années. C'est la raison pour laquelle la transmutation de ces éléments est envisagée. Celle-ci est techniquement efficace dans un nombre restreint de types de réacteurs nucléaires. Parmi eux, les réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur, également appelés ADS (Accelerator Driven System), ont un potentiel intéressant pour la transmutation des actinides mineurs. Le principal atout de ces réacteurs, comparés aux réacteurs critiques, est leur sous-criticité qui permet une souplesse sur le pilotage du cœur et sur la composition de son combustible.

Les études de références réalisées jusqu'à présent mettent en jeu des ADS dont la faible puissance unitaire peut être pénalisante pour l'étude de scénarios d'évolution du parc nucléaire français. En effet, suivant les prospectives étudiées, plusieurs dizaines de ces ADS sont nécessaires pour transmuter les actinides mineurs générés chaque année par les réacteurs nucléaires français dont la production s'élève à environ 410 TWh.

Pour cela et afin de revisiter l'intérêt potentiel des réacteurs sous-critiques pour la transmutation des déchets nucléaires de haute activité et à vie longue, nous avons développé dans le cadre de ces travaux de thèse, un concept théorique d'ADS de grande puissance nommé ADS MUST (MUltiple Spallation Target). Son fonctionnement s'appuie sur l'utilisation de plusieurs cibles de spallation disposées à l'intérieur d'un cœur sous-critique. Le travail de dimensionnement présenté dans cette thèse permet notamment d'estimer la puissance thermique théorique du concept, pouvant atteindre plus de 1 GW.

La capacité de transmutation du concept d'ADS MUST est étudiée dans le cadre de scénarios représentatifs du parc électronucléaire français. Les scénarios considérés sont qualifiés de double strate car deux niveaux de réacteurs sont étudiés. L'un est constitué d'un ensemble d'ADS qui transmutent les actinides mineurs produits par une autre strate de réacteurs dédiés à la production d'électricité. Cette dernière est composée soit de REP (Réacteur à Eau Pressurisée), soit de RNR (Réacteur à Neutrons Rapides). Les résultats obtenus montrent que quelques unités d'ADS MUST pourraient incinérer le flux d'actinides mineurs provenant de la strate électrogène à l'équilibre.

Dans le premier chapitre de ce manuscrit, nous décrivons le contexte énergétique mondial et nous définissons les notions fondamentales de physique des réacteurs. Puis, nous présenterons le cadre législatif de la gestion des déchets nucléaires.

Dans le deuxième chapitre, nous décrivons les actinides mineurs et leurs caractéristiques. Ensuite, nous étudierons le phénomène de transmutation induite par réaction nucléaire. Nous expliquerons le principe de fonctionnement d'un réacteur piloté par accélérateur, avant de présenter les scénarios électronucléaires étudiés.

Le chapitre suivant fera l'objet de l'introduction des programmes de simulation utilisés dans ce travail de thèse. Les calculs de transport de particules ont été réalisés avec le code MCNPX (Monte Carlo N-Particle eXtended) et ceux d'évolution de combustible soumis à une irradiation avec le code MURE (MCNP Utility for Reactor Evolution). Enfin, nous présenterons le code de scénario électronucléaire CLASS (Core Library for Advanced Scenario Simulation) développé au sein du groupe ERDRE (Experimental Research on Data Reactor and Energy) du laboratoire SUBATECH (Laboratoire de physique SUBAtomique et des TECHnologies associées) de Nantes.

Le quatrième chapitre sera consacré à la méthode de dimensionnement des ADS MUST et à la détermination de leur combustible pour une filière donnée. Chacune d'entre elles dépend du type de réacteur associé au réacteur sous-critique, à la stratégie de transmutation et aux caractéristiques de l'ADS (caloporteur et durée d'irradiation). Un protocole a été mis en place et

permet de définir les dimensions du cœur, sa puissance thermique ainsi que l'intensité du faisceau de protons alimentant les cibles de spallation. La composition du combustible à l'équilibre de l'ADS est également déterminée en fonction des spécificités de chaque filière.

Le dernier chapitre sera dédié à l'analyse de l'évolution du combustible de l'ADS MUST et de son coefficient de multiplication au cours d'un cycle pour les différentes filières. L'étude simplifiée de scénarios de parcs électronucléaires est enfin réalisée.

Chapitre 1

Contexte énergétique et définitions

Afin de définir le contexte de ce travail de thèse, nous commencerons par un état des lieux de la production énergétique mondiale. Puis, nous décrirons la spécificité de la production électrique française. Ensuite, nous introduirons des notions fondamentales de physique des réacteurs. Nous expliquerons le principe de fonctionnement d'une centrale nucléaire et nous définirons les termes importants utilisés dans nos études. Nous décrirons le classement des déchets utilisé en France. Enfin pour clore ce premier chapitre, nous présenterons les lois sur la gestion des déchets radioactifs, cadre de ces travaux de recherche.

1.1 Contexte énergétique mondial et français

L'énergie est un besoin devenu indispensable à notre mode de vie. Mais son utilisation effrénée dans les pays occidentaux soulève de nombreuses questions en terme de ressources et d'impacts environnementaux. Il est intéressant de connaître, tout d'abord, le contexte international. Puis, cette étude étant effectuée dans le cadre de lois françaises sur la gestion des déchets radioactifs, nous présenterons également les spécificités nationales et les problématiques associées.

1.1.1 Situation énergétique mondiale

Production et consommation

Au cours du XIX^e siècle, la production énergétique mondiale a fortement augmenté. Tout d'abord, avec le développement des machines à vapeur basé principalement sur l'utilisation du charbon. Puis, le pétrole et le gaz ont pris une place importante et sont aujourd'hui, avec le charbon, les principaux contributeurs de la production énergétique primaire mondiale comme le montre la figure 1.1.

Près de 81 % des $12\,150 \cdot 10^6$ tep (tonne équivalent pétrole) de la production mondiale d'énergie primaire de 2009 sont issus de la combustion de ces ressources fossiles [1]. En com-

paraison, la part produite par les centrales nucléaires est inférieure à 6 % et celle basée sur l'utilisation de biocarburant et de déchets est de l'ordre de 10 %.

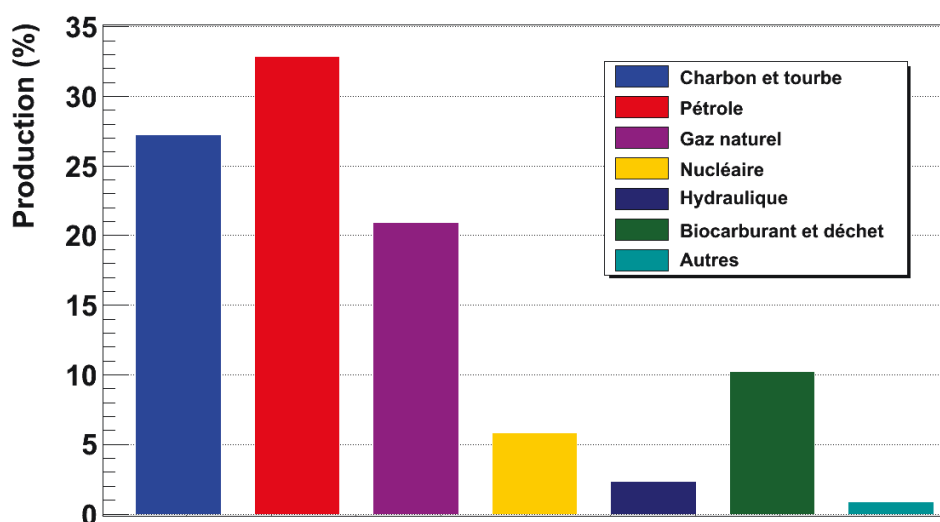


Figure 1.1: Répartition des 12 150 Mtep de la production énergétique primaire mondiale de 2009 [1]. La partie « Autres » comprend la géothermie, le solaire, l'éolien...

Il y a, de plus, une forte hétérogénéité mondiale de la consommation d'énergie comme le montre le tableau 1.1 [1]. En 2009, les pays de l'OCDE (Organisation de Coopération et de Développement Économique) ont consommé à eux seuls près de 43 % de l'énergie mondiale alors qu'ils représentaient environ 18 % de la population. En comparaison, le continent africain en a consommée seulement 6 %, pour près de 15 % de la population mondiale. Donc, si la consommation énergétique par habitant augmente, dans les régions où elle est encore faible aujourd'hui, pour se rapprocher de celle des pays de l'OCDE, il faut s'attendre à une importante croissance de la demande mondiale.

Région	Consommation (%)	Population (million d'habitants)
OCDE	42.8	1225
Chine	17.3	1338
Asie hors Chine	12.3	2208
Amérique latine	4.9	451
Afrique	6.0	1009
Europe hors OCDE et Eurasie	8.1	335
Moyen Orient	4.7	195

Tableau 1.1: Pourcentage de la consommation énergétique mondiale et population par région.

La problématique de cette thèse correspond au domaine de l'énergie nucléaire et le vecteur énergétique qui en résulte est l'électricité. En étudiant le diagramme 1.2, nous remarquons que la part d'électricité produite par l'énergie nucléaire dans le monde est d'environ 13 % [1]. Encore une fois, les combustibles fossiles dominent clairement les autres sources énergétiques, avec plus de 67 % de la production mondiale. Le charbon correspond, à lui seul, à environ 40 % de celle-ci. Parmi les sources importantes de production électrique, la part de l'hydroélectricité représente près de 16 %.

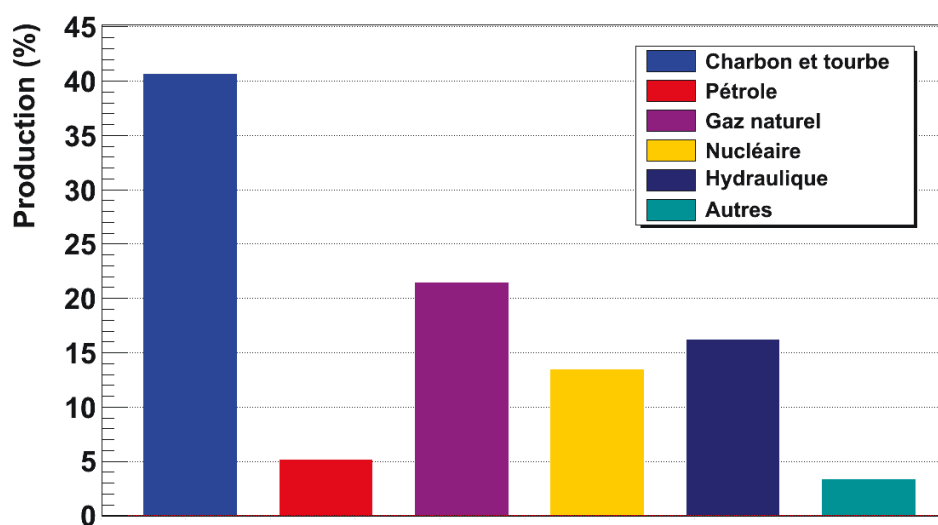


Figure 1.2: Répartition de la production d'électricité mondiale en 2009. La partie « Autres » regroupe la géothermie, le solaire, l'éolien, la combustion de déchets, les biocarburants...

Pays	Production (TW·h)	Production (%)
États-Unis	830	30.8
France	410	15.2
Japon	280	10.4
Russie	164	6.1
Corée	148	5.5
Allemagne	135	5.0
Canada	90	3.3
Ukraine	83	3.1
Chine	70	2.6
Royaume-Uni	69	2.6

Tableau 1.2: Production électronucléaire par pays et pourcentage de la production électronucléaire mondiale en 2009.

L'énergie nucléaire est présente dans un nombre de pays très restreint. Seulement dix pays génèrent environ 85 % de la production électronucléaire mondiale qui était de 2697 TW·h en

2009, comme le montre le tableau 1.2 [1]. Nous pouvons même aller plus loin en constatant que les États-Unis et la France en produisent à eux seuls près de 46 %.

Impact environnemental

Il y a donc un recours massif aux énergies basées sur l'utilisation de ressources fossiles. Cela soulève le problème de la production de gaz à effet de serre. La majeure partie des scientifiques semble aujourd'hui unanime sur les nuisances liées à leur émission [2].

La combustion du pétrole, du gaz naturel et du charbon produit des dioxydes de carbone, de soufre ou encore d'azote. La forte utilisation des énergies dites fossiles conduit donc à une forte émission de gaz à effet de serre et au réchauffement global de la planète.

De ce point de vue, l'énergie nucléaire a l'avantage de ne pas avoir de production directe de gaz à effet de serre. Ce type d'énergie est donc une des solutions alternatives aux énergies fossiles afin de limiter le réchauffement climatique.

Cependant, le nucléaire nécessite une vigilance accrue pour la sûreté des réacteurs et la gestion des déchets générés. L'étude de la gestion des déchets nucléaires de haute activité à vie longue est d'ailleurs la principale motivation des études présentées ici.

Ressources

L'exploitation intensive des ressources fossiles pose le problème de leur raréfaction, principalement pour le pétrole et le gaz naturel conventionnel. En effet, leur formation demande plusieurs millions d'années mais leur rythme de consommation est radicalement plus rapide de nos jours.

Le tableau 1.3 recense les réserves prouvées et une consommation annuelle associée. Pour les ressources fossiles, il s'agit des valeurs de 2011 [3] et pour l'uranium ce sont celles de 2010 [4].

Ressource	Réserve prouvée	Consommation	Durée d'exploitation
Pétrole	234.3 Gt	4.1 Gt	57 ans
Gaz naturel	208.4 Tm ³	3.2 Tm ³	65 ans
Charbon	860.9 Gt	3.7 Gt	233 ans
Uranium	5327.2 kt	63.9 kt	83 ans

Tableau 1.3: Réserves et consommations des ressources fossiles et d'uranium. L'estimation de la durée d'exploitation est effectuée à partir des consommations de chacune des ressources supposées constantes au cours du temps. Les réserves de ressources fossiles sont les quantités prouvées fin 2011 et la consommation est celle de 2011. Pour l'uranium, sont prises en compte uniquement les réserves assurées et à faible coût (130 \$ par kg d'uranium). La valeur de la consommation est celle de 2010.

L'estimation de la durée d'exploitation restante est réalisée en supposant la consommation de chacune de ces ressources constante au cours du temps. Avec cette hypothèse, nous obtenons un ordre d'idée des échelles de temps liées à l'utilisation de ces ressources au rythme actuel de consommation.

Nous constatons des durées d'exploitation d'environ 57 ans pour le pétrole et de 65 ans pour le gaz naturel. Ce sont des temps extrêmement courts aux vues de l'importance de ces ressources dans la production énergétique mondiale. Le charbon possède par contre des réserves plus conséquentes.

La durée d'exploitation est de l'ordre de 80 ans pour l'uranium dont le prix actuel est inférieur à 130 dollars par kg, si son rythme de consommation ne change pas. Cependant, pour des coûts d'exploitation plus élevés (inférieur à 260 dollars par kg), il existe des réserves supplémentaires portant les ressources à plus de 7096 kilotonnes d'uranium [4] correspondant à une durée d'exploitation supérieure à la centaine d'années. D'autres réserves sont envisageables comme, par exemple, l'uranium contenu dans l'eau de mer, mais cela demande le développement de nouvelles technologies et des coûts d'exploitations très importants.

Les estimations des durées d'exploitation du tableau 1.3 sont basées sur des hypothèses très simplistes. Mais réaliser des prospectives dans ce domaine est très difficile car elles dépendent de très nombreux paramètres comme, par exemple, la démographie, les avancées technologiques, l'économie ou encore la géopolitique. Cependant, il semble que la consommation mondiale tende à augmenter durant les prochaines décennies [5].

Par conséquent, les limites des ressources énergétiques pourraient être atteintes plus rapidement qu'anticipées dans le tableau 1.3. Donc une modification du bouquet énergétique mondial paraît inéluctable et le nucléaire fait partie des technologies susceptibles de jouer un rôle au cours de cette mutation.

Optimisation des ressources en uranium

Une prolongation du recours à l'énergie nucléaire peut être envisageable en valorisant le plutonium. En effet, la plupart des réacteurs fonctionnent uniquement avec de l'uranium enrichi en ^{235}U qui permet la production d'énergie. Mais cette transformation est fortement consommatrice d'uranium naturel principalement composé de l'isotope 238. Il faut entre 4 et 9 kg d'uranium naturel pour produire 1 kg d'uranium enrichi [6] et l'uranium appauvri en ^{235}U résultant reste généralement inutilisé.

Or, le plutonium mélangé à l'uranium appauvri ou naturel dans des combustibles appelés MOX (Mélange d'OXides) peut permettre de produire de l'énergie en économisant les ressources. Cette stratégie est d'ailleurs en partie appliquée dans le parc français et permet d'éco-

nomiser près de 10 % d'uranium enrichi [7].

Des réacteurs nucléaires appelés RNR (Réacteur à Neutrons Rapides) sont également envisagés pour leur capacité régénératrice ou surgénératrice. C'est-à-dire qu'au cours de leur cycle, ces systèmes utilisant un combustible de type MOX, consomment autant ou moins de plutonium qu'ils en produisent. Il est ainsi possible d'optimiser l'utilisation des ressources en minerai.

Des filières basées sur l'utilisation du thorium sont également étudiées. Cet élément très abondant pourrait remplacer l'uranium et ainsi prolonger les ressources nécessaires au fonctionnement des réacteurs nucléaires.

1.1.2 Situation énergétique française

La France possède une répartition de sa production électrique très singulière en comparaison de la distribution observée au niveau mondial. En effet, la figure 1.3 montre la place prépondérante du nucléaire avec plus de 75 % de la production électrique française totale en 2009 [8]. Les autres sources de production sont principalement l'hydraulique, le charbon et le gaz naturel avec respectivement des proportions de 11.4 %, 5.3 % et 3.9 % de la production nationale.

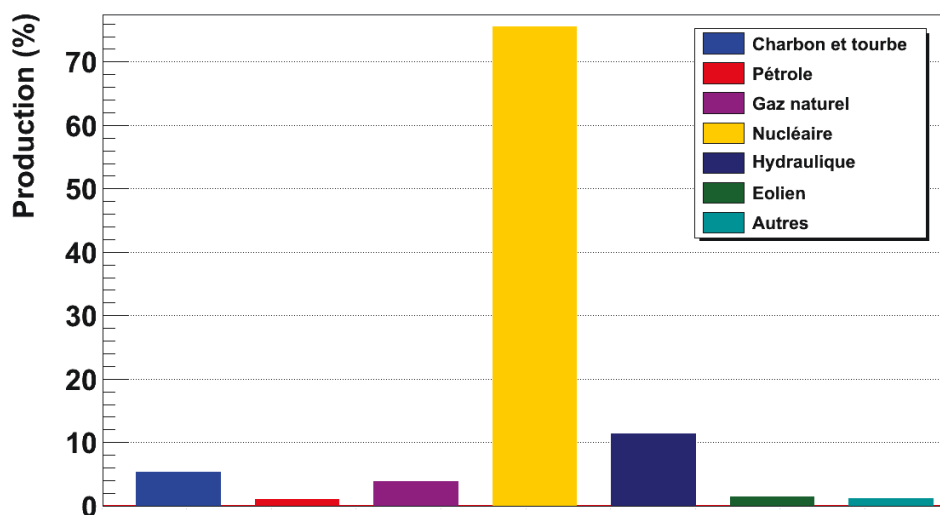


Figure 1.3: Répartition de la production d'électricité Française en 2009. La partie « Autres » regroupe la combustion de déchets, les biocarburants, le solaire, la marée motrice...

Le parc nucléaire français est composé de 58 réacteurs en fonctionnement pour une puissance électrique installée de 63 GW, permettant de produire environ 410 TW·h par an. Les plus

anciens ont été mis en service en 1978 et leur exploitation devrait s'arrêter d'ici 2020. Donc dans le cadre d'une continuité de la production d'électricité d'origine nucléaire au niveau actuel, une stratégie de renouvellement du parc doit être mise en place. Nous présenterons les systèmes existants et à l'étude dans la partie 1.2.5.

1.2 Notions fondamentales de physique des réacteurs

Nous allons dans ce paragraphe présenter de manière très simplifiée le fonctionnement d'un réacteur nucléaire afin d'introduire les termes importants utilisés dans les études présentées ici.

1.2.1 Fonctionnement d'un réacteur nucléaire

Le principe de fonctionnement d'un réacteur nucléaire est illustré par le schéma 1.4. Il est composé d'un cœur contenant le combustible dégageant de la chaleur et dans lequel circule un fluide nommé caloporteur. Une fois chauffé au contact du combustible, le caloporteur sort du cœur par des conduits appelés circuit primaire et transfère sa chaleur à un circuit secondaire. Le fluide de ce deuxième circuit fait tourner des turbines permettant la production d'électricité. Le circuit secondaire est enfin refroidi par une source d'eau froide comme la mer ou un fleuve.

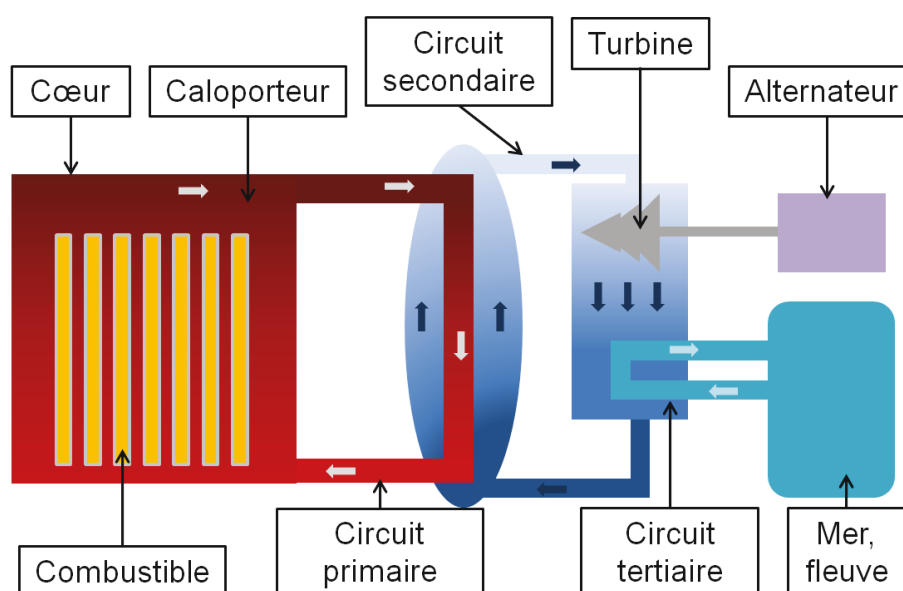


Figure 1.4: Schéma de principe d'un réacteur nucléaire utilisant de l'eau comme caloporteur.

La chaleur libérée par le combustible est due à la réaction de fission nucléaire. Lorsqu'un neutron interagit avec un noyau il peut être absorbé. Les deux voies de réactions principales

sont alors, soit la capture du neutron par le noyau formant ainsi un noyau plus lourd, soit la fission du noyau.

Lors de cette réaction de fission, le noyau se sépare en au moins deux fragments appelés produits de fission et des particules sont émises (neutrons, γ ...). Les produits de fission et les particules sont libérés avec une énergie cinétique totale de l'ordre de 200 MeV. Cette énergie est en grande majorité celle des fragments de fission. Ces derniers la transfèrent alors par diffusion coulombienne avec le cortège électronique des atomes environnants. L'énergie alors transférée augmente l'agitation moléculaire et donc la température du milieu.

Chaque réaction entre un neutron et un noyau se produit avec une certaine probabilité qui dépend de plusieurs paramètres comme l'énergie du neutron incident, la nature du noyau cible et la température du milieu. Chaque type de réaction d'un neutron possédant une énergie donnée, avec un noyau donné, est caractérisé par une grandeur appelée section efficace dont l'unité est le barn.

Ainsi, si un noyau comme l' ^{235}U , a une grande section efficace de fission, on parle alors d'un noyau fissile. Inversement, certains noyaux ont des sections efficaces de capture élevées comme, par exemple, le ^{10}B .

1.2.2 Coefficient de multiplication

Le coefficient de multiplication neutronique k_{eff} défini par l'expression 1.1 permet de connaître le comportement du cœur.

$$k_{eff} = \frac{N_{i+1}}{N_i} \quad (1.1)$$

Ce coefficient est le rapport des N_{i+1} neutrons produits par les fissions induites par les N_i neutrons issus des fissions précédentes. Ou autrement dit, une génération de N_i neutrons qui interagit avec le milieu, va produire une nouvelle génération de N_{i+1} neutrons. Le rapport de ces deux nombres, nous indique alors l'évolution de la réaction en chaîne.

Si le k_{eff} est supérieur à un, le nombre de neutrons augmente et la réaction en chaîne s'emballé, on parle alors de système sur-critique. S'il est inférieur à l'unité, la réaction en chaîne tend à s'arrêter naturellement, car il y a de moins en moins de neutrons dans le réacteur alors qualifié de sous-critique. Lorsque le coefficient multiplicateur est égal à un, la réaction est stable, c'est le régime critique. C'est le cas de l'ensemble des réacteurs français.

Il est aussi parfois pratique d'utiliser la réactivité du cœur définie par :

$$\rho = 1 - \frac{1}{k_{eff}} \quad (1.2)$$

Le coefficient de multiplication peut également être calculé à partir des taux de réaction.

$$k_{eff} = \frac{\sum_i v_i \Gamma_{fi} + 2 \sum_i \Gamma_{(n,2n)i}}{\sum_i \Gamma_{ai} + \sum_i \Gamma_{(n,2n)i}} (1 - P_e) \quad (1.3)$$

Dans cette expression, N_i est la quantité de l'isotope i dont les taux de réaction de fission, d'absorption et de (n,2n) sont notés Γ_{fi} , Γ_{ai} et $\Gamma_{(n,2n)i}$. v_i est le nombre moyen de neutrons émis par fission de ce noyau. ϕ est le flux neutronique dans le cœur et P_e est la probabilité qu'un neutron s'échappe du système.

1.2.3 Puissance thermique du cœur et taux de combustion

L'énergie libérée dans le cœur est due aux fissions des noyaux du combustible. La puissance thermique correspond à l'énergie produite dans le système par seconde. Donc, la puissance thermique P_{th} du cœur dépend du nombre de fissions par seconde N_f et de l'énergie émise par fission.

En supposant une énergie moyenne émise par fission identique pour tous les noyaux $\langle E_f \rangle$, la puissance thermique peut alors s'écrire :

$$P_{th} = \langle E_f \rangle \cdot N_f \quad (1.4)$$

Si la puissance du réacteur est constante sur l'ensemble de la durée d'irradiation T_I , le taux de combustion B_u associé, appelé également « burn-up », est alors défini par :

$$B_u = \frac{P_{th} \cdot T_I}{m_{NL}} \quad (1.5)$$

Dans cette équation T_I est en jour, P_{th} en GW et m_{NL} est la masse de noyaux lourds initiale présente dans le combustible en tonne.

Plus le taux de combustion est élevé, plus l'utilisation du combustible a été optimisée. Actuellement en France, le combustible utilisé est déchargé des réacteurs après avoir atteint un burn-up d'environ 30 à 50 GW·j·t⁻¹ [9].

1.2.4 Neutrons retardés et pilotage du cœur

Lors d'une fission, deux types de neutrons sont émis. Les premiers sont libérés presque instantanément, environ 10⁻¹⁷ secondes après la séparation des produits de fission. Pour cette raison, ils sont appelés « neutrons prompts ». Le deuxième type de neutrons dit « retardés » est, par contre, émis avec un délai pouvant varier de la milliseconde à la minute, qui est très long devant le temps de vie d'un neutron dans le cœur de l'ordre de la microseconde. Une autre particularité de ces neutrons est une énergie d'environ 0.2 à 0.6 MeV. En comparaison, pour les

neutrons prompts, elle est de l'ordre de 2 MeV et peut atteindre 10 MeV.

Les neutrons retardés sont émis suite à la désexcitation β^- de certains produits de fission. Ainsi, le délai d'émission dépend de la période de décroissance du fragment de fission. Cette durée diffère donc pour chacun des noyaux.

La répartition des produits de fission créés dépend du noyau qui fissionne et par conséquent, le nombre de fragments de fission émetteur β^- également. La proportion de neutrons retardés varie donc suivant le noyau fissionnant comme le montre le tableau 1.4 [10].

Noyau	$\bar{\nu}_{Tot}$	$\bar{\nu}_r$	β_r (%)
^{235}U	2.437	0.016	0.657
^{238}U	2.448	0.044	1.797
^{237}Np	2.636	0.011	0.417
^{238}Pu	2.895	0.004	0.138
^{239}Pu	2.881	0.006	0.208
^{240}Pu	2.803	0.009	0.321
^{241}Pu	2.945	0.016	0.543
^{241}Am	3.08	0.004	0.130
^{243}Am	3.272	0.008	0.244
^{244}Cm	3.244	0.004	0.123
^{245}Cm	3.596	0.006	0.167

Tableau 1.4: Le nombre moyen de neutrons total $\bar{\nu}_{Tot}$ et retardé $\bar{\nu}_r$ émis par fission produite par un neutron de 10^{-5} eV. β_r est la proportion de neutrons retardés en %.

Dans un réacteur critique, le nombre de neutrons doit être contrôlé au cours de son fonctionnement. La présence de neutrons retardés permet le pilotage du cœur en limitant la vitesse de variation de sa réactivité. Le délai d'émission des neutrons retardés augmente la durée de vie moyenne des neutrons dans le cœur. Ainsi, la quantité de neutrons évolue plus lentement permettant, si nécessaire, de la réguler en introduisant des composants neutrophages.

Plusieurs techniques sont utilisées pour cela suivant les besoins et le type de cœur. Par exemple, dans les réacteurs refroidis avec de l'eau, il est possible de mélanger du bore au caloporteur. Cette méthode a l'avantage d'avoir une influence homogène sur l'ensemble du cœur [9]. Par contre, il faut une quinzaine de minutes pour observer ses effets, le temps que le bore soit diffusé. Une autre technique est l'utilisation d'assemblages de contrôle également appelés « grappes ». Ils sont composés de crayons contenant des matériaux absorbant fortement les neutrons comme par exemple du bore, du cadmium ou encore de l'indium. Ces assemblages

sont insérés dans le cœur pour réguler rapidement sa réactivité et sa puissance. À l'inverse de l'utilisation du bore soluble, les grappes de contrôle ont un impact local sur le flux neutronique et donc sur l'évolution du combustible et sur la distribution de la puissance.

1.2.5 Principales filières nucléaires

Ils existent deux grandes familles de réacteurs différenciées par l'énergie des neutrons dans le cœur.

La plus développée est caractérisée par des neutrons lents ou thermiques, c'est-à-dire ayant une énergie inférieure à 1 eV. En effet, dans ces réacteurs un modérateur est utilisé afin de ralentir les neutrons issus de la fission. Les réacteurs français actuels de type REP (Réacteurs à Eau Pressurisée) font partie de la famille des réacteur à neutrons thermiques. Dans ces cœurs, l'eau est à la fois le caloporteur et le modérateur. Les neutrons perdent une partie de leur énergie lorsqu'ils sont diffusés en interagissant avec l'hydrogène de l'eau. Ils sont ainsi ralentis et une partie du spectre neutronique dans le cœur est dans le domaine thermique. L'EPR (European Pressurized Reactor) dont une unité est en cours de construction à Flamanville est une nouvelle génération optimisée de REP.

L'autre famille est celle des réacteurs à neutrons rapides (RNR). Ces systèmes s'affranchissent du mécanisme de modération en choisissant le caloporteur de manière à ralentir le moins possible les neutrons afin de garder un spectre rapide dont la valeur moyenne est de l'ordre de la centaine de keV.

Il existe plusieurs concepts de RNR différenciés par leur caloporteur. En France, la technologie sodium s'est imposée ces dernières années à travers l'étude poussée du concept ASTRID (Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration) [11], le prototype français de réacteur rapide refroidi au sodium dont la construction est planifiée pour 2020.

Dans le cadre de la réflexion de l'utilisation à long terme de l'énergie nucléaire, le groupe de recherche GIF (Generation IV International Forum) a été initié en 2000 et compte 13 pays membres dont la France [12]. Cette collaboration a fixé des critères que les réacteurs de la nouvelle génération doivent respecter : la compétitivité économique, l'amélioration de la sûreté, la réduction des déchets, l'optimisation de l'utilisation des ressources et la limitation des risques de prolifération des armes nucléaires. D'autres caractéristiques complémentaires sont également prises en compte comme la capacité de dessaler l'eau de mer ou de produire de l'hydrogène...

Les études réalisées ont ainsi permis de sélectionner six technologies. Le SFR (Sodium-cooled Fast Reactor), le GFR (Gas-cooled Fast Reactor) et le LFR (Lead-cooled Fast Reactor) sont des réacteurs à neutrons rapides qui utilisent respectivement comme caloporteur du sodium, de l'hélium et du plomb. Le concept MSR (Molten Salt Reactor) peut fonctionner avec

des neutrons thermiques ou rapides et son combustible est mélangé à des sels fondus. Il existe deux versions des réacteurs de type SCWR (SuperCritical Water-cooled Reactor) l'une avec des neutrons rapides et l'autre avec des neutrons thermiques. Le dernier concept étudié est le VHTR (Very-High-Temperature Reactor). Ce réacteur à spectre thermique et fonctionnant à très haute température utilise du graphite pour modérer les neutrons et est refroidi par de l'hélium.

L'une des approches possibles pour économiser les ressources est l'utilisation de réacteur « régénérateur » ou « surgénérateur » comme les RNR. Ces systèmes produisent au cours de leurs cycles les noyaux fissiles qui serviront dans un prochain combustible.

Les filières basées sur l'utilisation de l'uranium s'affranchissent ainsi de l'enrichissement en ^{235}U , et utilise un mélange d'uranium naturel ou appauvri et de plutonium. L' ^{238}U est alors appelé « noyau fertile », car il crée par captures successives le ^{239}Pu qui servira ensuite de noyau fissile. La capture neutronique de l' ^{238}U produit de l' ^{239}U , ce dernier décroît en 23.45 minutes pour former du ^{239}Np dont le descendant avec une période de 2.36 jours est le ^{239}Pu .

La régénération peut également être appliquée dans une filière utilisant le ^{232}Th comme noyau fertile et le ^{233}U comme noyau fissile. La capture neutronique du ^{232}Th crée du ^{233}Th dont la demi-vie est de 22.3 minutes. Ce dernier décroît vers le ^{233}Pa qui produit, avec une période radioactive d'environ 27 jours, le ^{233}U .

1.3 Déchets nucléaires en France

Les 58 réacteurs du parc nucléaire français produisent une quantité importante de déchets radioactifs. L'ensemble de ces déchets radioactifs, issus des filières électronucléaires, de la médecine nucléaire... représente une masse de l'ordre de 130 000 tonnes par an.

ACTIVITÉ	PÉRIODE		
	Vie très courte (Période < 100 jours)	Vie courte (Période ≤ 31 ans)	Vie longue (Période > 31 ans)
	Très faible activité (TFA)	Stockage de surface (Centre de stockage des déchets de très faible activité de l'Aube)	
	Faible activité (FA)	Stockage de surface (Centre de stockage des déchets de faible et moyenne activité de l'Aube)	Stockage à faible profondeur (à l'étude dans le cadre de la loi du 28 juin 2006)
	Moyenne activité (MA)		
	Haute activité (HA)		Stockage réversible profond (à l'étude dans le cadre de la loi du 28 juin 2006)

Figure 1.5: Classification française des déchets radioactifs [13].

Deux caractéristiques permettent de réaliser un classement de ces déchets [13] [14]. La

première est l'activité du radionucléide. C'est-à-dire le nombre de noyaux se désintégrant par seconde. L'unité utilisée pour l'activité est le becquerel correspondant à une désintégration par seconde. La deuxième caractéristique est la période de décroissance radioactive qui est le temps nécessaire pour que le nombre de noyaux du radionucléide considéré diminue de moitié.

Les déchets radioactifs sont classés en quatre catégories d'activités et trois périodes de décroissances radioactives. Il y a les déchets à vie très courte, courte et longue dont les périodes sont respectivement inférieures à 100 jours, inférieures à 31 ans et supérieures à 31 ans. La figure 1.5 illustre la classification française des déchets radioactifs.

1.3.1 Déchets de très faible activité

Les déchets de très faible activité sont constitués de radionucléides à vie courte et longue dont l'activité est généralement inférieure à 100 becquerels par gramme. Ils proviennent de sites pollués par la radioactivité et du démantèlement des centrales ou des usines du cycle. Ce sont principalement des gravas, du béton ou des déchets métalliques.

Étant donné leur diversité, ces déchets sont conditionnés en fonction de leur nature et sont stockés depuis 2003 dans un centre dédié dans le département de l'Aube.

1.3.2 Déchets de faible activité à vie longue

Ils sont principalement constitués de graphite issu des premières centrales nucléaires ou de matériaux contenant du radium. Ces déchets contiennent des radionucléides à vie longue comme, par exemple, le carbone 14 dont la période de décroissance est de 5700 ans. Leur activité est inférieure à 100 000 becquerels par gramme.

Ils sont actuellement entreposés sur leur site de production ou sur des sites ayant accueillis de la radioactivité par le passé.

1.3.3 Déchets de faible et moyenne activité à vie courte

Ils ont une activité de l'ordre de la centaine à un million de becquerels par gramme. Ce sont essentiellement des déchets de maintenance (vêtements, outils...) et de fonctionnement des installations nucléaires comme les effluents liquides ou gazeux. Les principaux noyaux radioactifs sont le ^{60}Co et le ^{137}Cs dont les périodes de décroissance respectives sont de 5.27 ans et 30.07 ans.

Leur volume est réduit au maximum par compaction avant qu'ils soient placés dans des conteneurs en inox ou en béton. Si ces déchets sont liquides, ils sont préalablement solidifiés. Ils sont ensuite envoyés dans un site de stockage spécifique dans le département de l'Aube,

depuis 1992. Le site de la Manche, aujourd'hui fermé, fut le premier site de stockage de ces déchets.

1.3.4 Déchets moyenne activité à vie longue

Les déchets de faible et moyenne activité à vie longue ont une activité généralement comprise entre un million et un milliard de becquerels par gramme. Ils sont principalement constitués de métaux entourant le combustible comme les gaines des crayons ou de matériaux ayant séjournés dans le cœur. Ils peuvent également être issus du traitement du combustible ou du démantèlement d'installations nucléaires (réacteurs, usines, laboratoires...).

Ces déchets sont compactés et généralement conditionnés dans des colis en inox ou en béton. Il est prévu qu'ils soient placés dans un site encore à l'étude.

1.3.5 Déchets de haute activité à vie longue

Les déchets de haute activité sont les composants non recyclés du combustible utilisé. Ils sont constitués de produits d'activation, de produits de fission et d'actinides mineurs. Ces derniers sont des noyaux lourds dont les principaux constituants sont le neptunium, l'américium et le curium. Ils feront l'objet d'une présentation plus détaillée dans la partie 2.1.

Ces déchets ont un niveau de radioactivité de plusieurs milliards à plusieurs dizaines de milliards de becquerels par gramme. Ils représentent plus de 95 % de la radioactivité totale des déchets radioactifs français. Ils contiennent des noyaux à vie courte, mais également à vie longue pouvant atteindre plusieurs millions d'années comme, par exemple, le ^{237}Np dont la période est de 2.14 millions d'années.

Ils sont mélangés à une matrice de verre et insérés dans un colis en inox. Ils sont ensuite entreposés en attendant la création d'un site de stockage qui doit être défini.

En France, l'uranium et le plutonium ne sont pas considérés comme des déchets. En effet, ils sont actuellement en partie recyclés dans des combustibles de type MOX. Il est ensuite également envisagé de les réutiliser dans les futurs réacteurs du parc.

1.3.6 Radiotoxicité

Lors des décroissances radioactives, les noyaux émettent des particules (α , β , γ) qui déposent leur énergie dans la matière environnante. Dans le corps humain, ces radiations peuvent provoquer des lésions dans les tissus ou les organes.

La radiotoxicité mesure le risque potentiel lié à l'ingestion ou à l'inhalation de radionucléides et se calcule avec l'expression suivante :

$$R = F_d \cdot A(t) \quad (1.6)$$

F_d est le facteur de dose en Sv par Bq. Ce dernier dépend de nombreux paramètres : la nature du rayonnement (α , β ...), la sensibilité de l'organe touché, du temps mis par l'organisme pour éliminer le radionucléide... Le facteur de dose correspond à la toxicité relative induite par un becquerel de l'isotope considéré.

$A(t)$ est l'activité du noyau en becquerel. L'activité d'un radionucléide est le nombre de désintégrations de ses noyaux par seconde. Elle évolue au cours du temps en fonction du nombre de noyaux présents $N(t)$ suivant la relation :

$$A(t) = \lambda N(t) \quad (1.7)$$

Où λ est la constante de décroissance du noyau.

1.4 Cadre législatif de la gestion des déchets nucléaires en France

1.4.1 Loi de 1991

En France, un programme de recherche sur la gestion des déchets radioactifs a été initié par la loi n°91-1381 du 30 décembre 1991 [15]. Elle est souvent appelée loi « Bataille » du nom de son rapporteur au Parlement. Elle fixe trois grandes orientations de recherches et son objectif est de fournir au Parlement des données scientifiques suffisantes aux prises de décisions sur les stratégies à mettre en place.

Axe 1 - Séparation et transmutation

Le premier axe de recherche a pour objectif d'étudier la possibilité de réduire le volume et la nocivité des déchets à vie longue. Cela demande le développement de techniques de séparation des différents éléments chimiques d'intérêts (recyclables ou transmutables), composant le combustible utilisé, afin de les extraire. De nombreuses études portent notamment sur la séparation des actinides mineurs.

Une fois extraits, le but est de les transmuter en éléments plus faiblement radioactifs et ayant des durées de vie plus courtes.

Le terme de transmutation nucléaire signifie simplement la transformation d'un noyau en un autre. Ce changement peut se faire naturellement, par exemple, par décroissance radioactive. Mais il peut être également provoqué par interaction du noyau avec une autre particule. C'est le cas, par exemple, dans un réacteur nucléaire où les atomes sont soumis à un flux neutronique provoquant des réactions comme des captures et des fissions.

Des recherches, dont ces travaux font partis, sont réalisées afin de transmuter les actinides mineurs, car ils ont de longues périodes de décroissance et un fort impact sur la radiotoxicité à long terme des déchets.

Axe 2 - Stockage en couches géologiques profondes

Ce deuxième axe correspond à l'étude de la faisabilité du stockage des déchets de haute activité à vie longue, réversible ou irréversible, dans des formations géologiques profondes. Ces couches géologiques doivent pouvoir assurer des conditions optimales de sûreté, pour une très longue durée pouvant aller jusqu'à plusieurs centaines de milliers d'années.

Pour cela des expériences sont menées dans le laboratoire souterrain de Bure [16] [17], afin d'étudier les roches sous leurs aspects mécaniques, chimiques, hydrogéologiques et thermiques.

Axe 3 - Conditionnement et entreposage

Ce dernier axe a pour but l'étude du conditionnement des déchets et de leur entreposage en surface ou subsurface. Ce dernier terme suggère un dépôt provisoire à l'inverse du stockage. Ainsi, l'entreposage est une solution d'attente pour placer les déchets en sécurité sur une durée de l'ordre de quelques dizaines à la centaine d'années. L'objectif est de laisser une possibilité de récupérer les déchets, si des avancées technologiques permettent de les traiter, et surtout de pouvoir réaliser des travaux de maintenance. Concevoir un site d'entreposage demande donc un site robuste mais également un conditionnement des déchets efficace sur une longue période afin de pouvoir les déplacer ultérieurement. Aujourd'hui, le conditionnement et l'entreposage des déchets de haute activité à vie longue sont réalisés sur le site de l'usine de retraitement de la Hague dans le département de la Manche.

1.4.2 Loi de 2006

La loi de 1991 sur la gestion des déchets fixait un rendez-vous 15 ans plus tard, pour réaliser un bilan des résultats obtenus, afin de proposer un projet de loi. Finalement, le 28 juin 2006, la loi n°2006-739 relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs, a été votée [15]. Elle prolonge les recherches sur la réduction de la quantité et de la radioactivité des déchets, par leur séparation chimique plus poussée et leur transmutation. Un bilan des résultats obtenus sur ces sujets, dont ceux présentés ici, doit être effectué en 2012.

De même, les études sur l'entreposage et le stockage doivent mener au choix d'un site afin de commencer sa construction en 2015. La loi impose également une réversibilité du stockage durant au moins cent ans.

Cette loi prévoit également l'élaboration tous les trois ans, d'un plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs. Il doit faire le point sur les modes de gestion existants, les besoins prévisibles en installations d'entreposage et de stockage. Puis, il fixe les nouveaux objectifs à atteindre.

La loi demande l'évaluation par les exploitants des charges financières futures pour le démantèlement et la gestion des déchets.

Elle fonde également la commission nationale d'évaluation financière (CNEF) et reconduit la commission nationale d'évaluation (CNE) créée par la loi de 1991.

Chapitre 2

Transmutation des actinides mineurs et réacteurs sous-critiques

Dans ce chapitre, nous commencerons par présenter plus en détails les actinides mineurs et les raisons pour lesquelles ils nous intéressent dans le cadre de cette thèse. Nous étudierons la manière de transmuter ces éléments. Puis, nous expliquerons le principe de fonctionnement des réacteurs sous-critiques et nous parcourrons rapidement l’histoire de ces systèmes également appelés ADS (Accelerator Driven System). Ensuite, nous décrirons le concept le plus étudié en Europe, l’ADS EFIT (ADS European Facility for Industrial Transmutation) et celui que nous avons développé l’ADS MUST (ADS MUltiple Spallation Target). Nous terminerons par la définition de la notion de scénarios double strate.

2.1 Actinides mineurs

Les actinides mineurs font partie des déchets de haute activité à vie longue présents dans le combustible usé. Ils sont nommés actinides, car ils se trouvent sur la ligne de l’actinium du tableau périodique des éléments. Le terme mineur est associé à leur très faible quantité dans le combustible usé, de l’ordre de 0.1 % de la masse des noyaux lourds. En comparaison, en sortie de REP, après 3 ans de refroidissement, les proportions massiques sont de près de 98.8 % pour l’uranium et de 1.1 % pour le plutonium [6]. Les trois actinides mineurs les plus abondants dans le combustible usé sont le neptunium, l’américium et le curium.

Actuellement, le parc français produit un peu plus d’une tonne par an d’actinides mineurs [6].

Les actinides mineurs sont principalement étudiés à cause de leur importante contribution à la radiotoxicité à long terme des déchets. Nous observons dans le tableau 2.1 des périodes pouvant dépasser le million d’années et des facteurs de dose par ingestion compris entre 2.87 et $3.60 \cdot 10^6 \text{ Sv} \cdot \text{g}^{-1}$ [18]. Le facteur de dose par ingestion ou par inhalation renseigne sur l’impact biologique et donc sur la toxicité de l’élément.

Dans le tableau 2.1, le ^{243}Cm et le ^{244}Cm , ayant des périodes de décroissance plus faibles, ont des descendants avec des temps de demi-vies importants et une radiotoxicité élevée. Le ^{243}Cm et le ^{244}Cm décroissent vers le ^{239}Pu et ^{240}Pu dont les périodes sont respectivement de 24119 et 6564 ans, et leur radiotoxicité de 574 et 2100 $\text{Sv}\cdot\text{g}^{-1}$.

Isotope	Période (an)	Facteur de dose (Sv/g)
^{237}Np	$2.14\cdot 10^6$	2.87
^{241}Am	432.2	$2.54\cdot 10^4$
^{242m}Am	152	$6.84\cdot 10^4$
^{243}Am	7380	$1.48\cdot 10^3$
^{243}Cm	28.5	$2.87\cdot 10^5$
^{244}Cm	18.1	$3.60\cdot 10^6$
^{245}Cm	8500	$1.34\cdot 10^3$

Tableau 2.1: Périodes des principaux actinides mineurs présents dans le combustible nucléaire utilisé et facteurs de dose par ingestion ou inhalation associés.

L'étude de la radiotoxicité à long terme du combustible utilisé montre l'importance des actinides mineurs. En effet, les produits de fission ont une grande influence au cours des premiers siècles sur la radiotoxicité des déchets, mais, ensuite, ce sont les contributions des actinides mineurs et du plutonium qui dominent.

Pour illustrer cela, la figure 2.1 représente l'évolution de la radiotoxicité du combustible utilisé d'un assemblage de réacteur de type REP, de puissance électrique 1300 MW. L'évolution du combustible de type UOX (oxyde d'uranium) a été calculée avec le programme MURE (voir partie 3.2), pour une irradiation de 3 ans à 80 % de la puissance du réacteur. Ce pourcentage est appelé facteur de charge et est appliqué afin de prendre en compte les temps d'arrêts de cœur pour les rechargements et les maintenances.

Les valeurs de la radiotoxicité obtenues correspondent à la nocivité de l'ingestion ou de l'inhalation de l'ensemble du combustible contenu dans l'assemblage. Il est irréaliste qu'une personne assimile un tel contenu, mais cela permet néanmoins de comparer différents résultats.

Les courbes de la figure 2.1 commencent à la fin d'une période d'irradiation. La courbe noire est l'évolution de la radiotoxicité de l'ensemble du combustible. Pour les deux autres, une partie des éléments est extraite. Les résultats de la courbe rouge sont obtenus avec la séparation de l'uranium et du plutonium. Pour ceux de la courbe bleue, les actinides mineurs sont également extraits.

Cette figure, nous renseigne sur les contributions des principaux éléments à la radiotoxicité des déchets à long terme. L'élément dont l'impact est le plus important après plusieurs dizaines de millions d'années est le plutonium. Nous observons, en effet, lorsqu'il est présent (courbe noire) que les valeurs restent très élevées. Les ^{239}Pu et ^{240}Pu , puis leurs descendants sont les principaux contributeurs à la radiotoxicité à long terme.

Si le plutonium est extrait afin d'être recyclé, la principale contribution est celle des actinides mineurs. Nous remarquons la forte différence entre les courbes rouge et bleue. Cette dernière, sans la contribution des actinides mineurs, décroît très rapidement au delà de quelques centaines d'années. La forte radiotoxicité initiale est principalement liée aux produits de fission.

Donc, si nous arrivons à supprimer les actinides mineurs et à multi-recycler le plutonium, la radiotoxicité serait nettement diminuée au-delà de quelques centaines d'années.

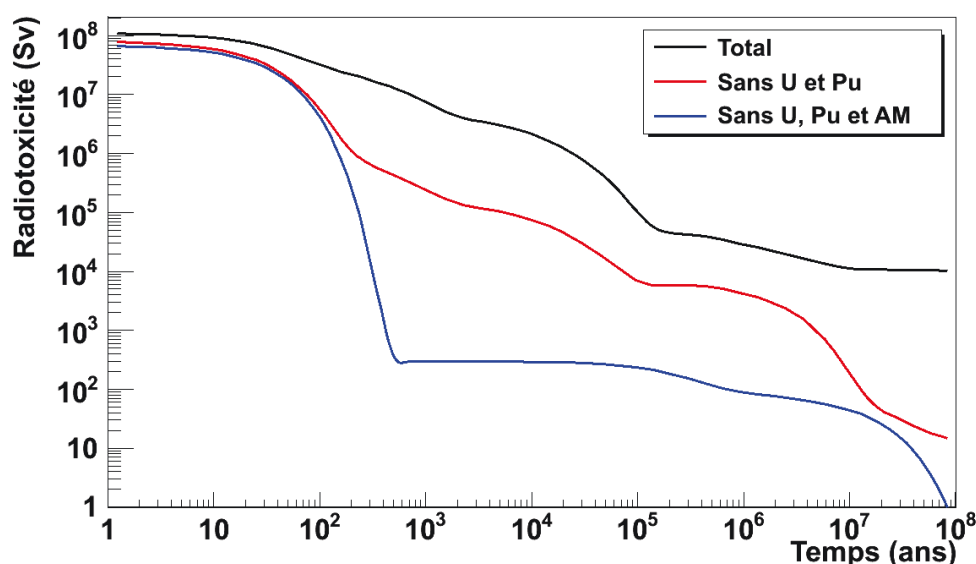


Figure 2.1: Évolution temporelle de la radiotoxicité par ingestion ou inhalation du combustible utilisé d'un assemblage de REP à combustible UOX pour une puissance électrique de 1300 MW et un facteur de charge de 80 %. Tout le combustible est pris en compte dans la courbe noire. Les courbes rouges et bleues sont obtenues en retirant d'abord l'uranium et le plutonium, puis les actinides mineurs.

L'autre problème est la forte chaleur résiduelle des actinides mineurs, notamment de l'américium et du curium. Elle est due à l'énergie déposée dans la matière par les particules produites par les désintégrations radioactives des noyaux composant les déchets.

Cette puissance thermique est gênante pour le stockage. En effet, pour des contraintes de sécurité, la température des colis ne doit pas être trop élevée (de l'ordre de 100 °C au contact des colis [19]). Le site potentiel de stockage français se trouvant dans une couche d'argile, il est important qu'elle reste raisonnable afin de ne pas détériorer les caractéristiques du site [16]. Par

exemple, la chaleur libérée par les colis ne doit pas conduire à des transformations minéralogiques significatives de la roche, ou à une dilatation trop importante des matériaux risquant de modifier la perméabilité du site. Le volume réservé à chaque colis est donc calculé en fonction de sa puissance thermique.

En éliminant les actinides, la température des colis de déchets est plus faible, il est alors possible de placer plus de colis sur un volume équivalent. Le potentiel de stockage du site est alors augmenté si les actinides mineurs sont transmutés.

2.2 Transmutation des actinides mineurs

Nous cherchons donc à transformer des actinides mineurs en noyaux à vie plus courte et à puissance thermique plus faible. Cette transformation, appelée transmutation, peut être provoquée par l'interaction des noyaux avec des particules. Il est ainsi envisageable d'utiliser le flux neutronique présent dans un réacteur nucléaire, pour transmuter les actinides mineurs.

2.2.1 Étude des sections efficaces des actinides mineurs

Dans un réacteur nucléaire, nous avons vu que les deux principales réactions sont la capture et la fission. La capture neutronique d'un actinide conduit généralement de manière directe ou indirecte à un noyau lourd ayant une période longue et une radiotoxicité élevée. Par exemple, une capture du ^{244}Cm produit le ^{245}Cm dont la période est de 8500 ans, ou encore des captures successives sur le plutonium produisent le ^{241}Pu qui décroît sur le ^{241}Am ayant une demi-vie de 432.2 ans.

Au contraire, les produits de fission ont généralement des demi-vies inférieures à quelques dizaines d'années et donc très inférieures à celles des actinides mineurs. Dans l'optique de transmuter ces derniers, et afin de diminuer la radiotoxicité à long terme des déchets, il est préférable de privilégier la fission à la capture.

La probabilité pour un neutron de provoquer la fission d'un noyau est donnée par sa section efficace et est dépendante de l'énergie du neutron incident. Or, les sections efficaces des actinides mineurs (figure 2.2) montrent qu'un spectre rapide est plus favorable à la fission qu'un spectre thermique. Même si les sections efficaces de capture sont généralement supérieures à celles de fission leurs écarts diminuent avec l'augmentation de l'énergie du neutron incident, jusqu'à un seuil pour une énergie de l'ordre du MeV où la fission devient dominante.

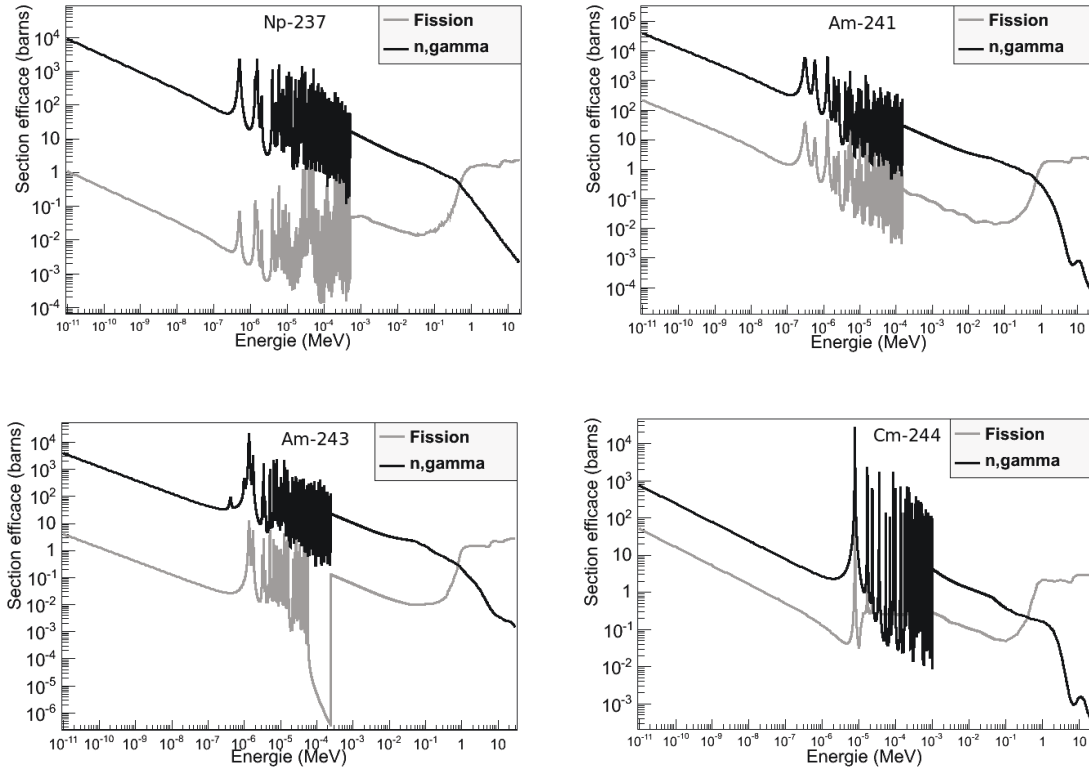


Figure 2.2: Sections efficaces des principaux actinides mineurs en fonction de l'énergie du neutron incident [10].

2.2.2 Spectre neutronique pour la transmutation

Dans un cœur, les neutrons ont une répartition en énergie qui dépend du type de réacteur considéré. Il faut donc étudier la valeur des sections efficaces moyennes intégrées sur le spectre représentatif du réacteur. Pour comparer le potentiel de fission et de capture, nous comparons les rapports des sections efficaces de fission par celles de captures, appelé rapport α .

Le tableau 2.2 recense les rapports α pour différents actinides mineurs dans des réacteurs de type REP et RNR [20]. Nous observons clairement une forte tendance de ces noyaux à capturer les neutrons à l'exception du ^{245}Cm . Néanmoins, les résultats sont plus favorables à la fission pour les réacteurs à neutrons rapides. Les valeurs sont, en effet, plus de dix fois supérieures pour ce type de système que pour les REP. Seul le ^{245}Cm a un rapport α du même ordre de grandeur pour les deux types de réacteurs.

Les RNR permettent donc de minimiser les réactions de capture en faveur de la fission.

Comme les rapports des sections efficaces le montrent, les neutrons rapides sont plus favorables à la fission directe des actinides mineurs. Mais, une capture peut mener à un noyau beaucoup plus fissile et n'est par conséquent pas un point négatif. C'est, par exemple, le cas pour le ^{244}Cm qui se transforme en ^{245}Cm un isotope très fissile. Il faut donc aussi prendre en

Noyau	REP	RNR
^{237}Np	0.02	0.19
^{241}Am	0.01	0.14
^{243}Am	0.01	0.12
^{244}Cm	0.06	0.71
^{245}Cm	6.67	5.56

Tableau 2.2: Rapports α dans un REP et un RNR.

compte les réactions des produits du noyau étudié.

Pour cela, nous pouvons comparer, pour un REP et un RNR, les taux de disparition des actinides mineurs ainsi que les taux de fission directe et indirecte. Le REP étudié a un taux de combustion de $60 \text{ GW}\cdot\text{j}\cdot\text{t}^{-1}$ avec un flux neutronique de $2.5 \cdot 10^{14} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$. Il utilise du combustible MOX et sa durée d'irradiation est de 1500 JEPN (Jour Équivalent Puissance Nominale). Le RNR a un burn-up de $140 \text{ GW}\cdot\text{j}\cdot\text{t}^{-1}$, son flux neutronique est de $3.4 \cdot 10^{15} \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ et l'irradiation correspond à 1700 JEPN.

Le tableau 2.3 donne les valeurs obtenues, pour les deux systèmes, des taux de disparition d'un isotope en pourcentage de sa masse initiale Γ_D [20]. Et également, les taux de fission intégrés sur l'ensemble de la durée d'irradiation Γ_{fg} , comprenant les fissions de l'isotope considéré et de ses descendants.

Nous observons un taux de fission globale entre deux et six fois supérieur pour les RNR comparés à ceux des REP. Les réacteurs à spectre rapide sont donc plus favorables à la transmutation que ceux à spectre thermique.

Noyau	REP		RNR	
	Γ_D (%)	Γ_{fg} (%)	Γ_D (%)	Γ_{fg} (%)
^{237}Np	46	4	63	24
^{241}Am	70	10	69	24
^{243}Am	65	6	63	15
^{244}Cm	44	16	50	27

Tableau 2.3: Taux de disparition Γ_D et de fission globale Γ_{fg} pour des irradiations standards en REP et RNR.

En France, les principales études sur la transmutation sont réalisées avec des concepts de type SFR.

2.3 Réacteur sous-critique piloté par accélérateur - ADS

Dans un premier temps, nous allons présenter la réaction de spallation. Elle sera utile à l'explication du principe de fonctionnement d'un réacteur sous-critique. Puis, nous donnerons un bref aperçu historique de ces systèmes avant de présenter le concept d'ADS EFIT. Après une réflexion sur le potentiel de transmutation des actinides mineurs de ce réacteur, nous décrirons le concept d'ADS MUST développé au cours de ces travaux de recherche.

2.3.1 Réaction de spallation

La réaction de spallation est produite lors de l'interaction d'un projectile, comme par exemple un proton, d'énergie supérieure à la dizaine de MeV par nucléon d'un noyau cible. Cette interaction nucléaire est décrite en deux étapes, illustrées par le schéma 2.3.

La première phase est appelée « cascade intranucléaire ». Elle correspond à l'interaction des nucléons de la particule incidente avec les nucléons du noyau cible. Ces derniers interagissent avec d'autres nucléons du noyau effectuant à chaque fois un transfert d'énergie. Au cours de cette cascade de collisions, des nucléons et pions peuvent être expulsés du noyau.

À la fin de cette phase, le noyau est dans un état fortement excité. Il peut alors suivre deux processus de désexcitation. Soit, la stabilisation du noyau est obtenue par « l'évaporation » de particules comme des neutrons, des protons, des deutons, des α ..., soit le noyau fissionne.

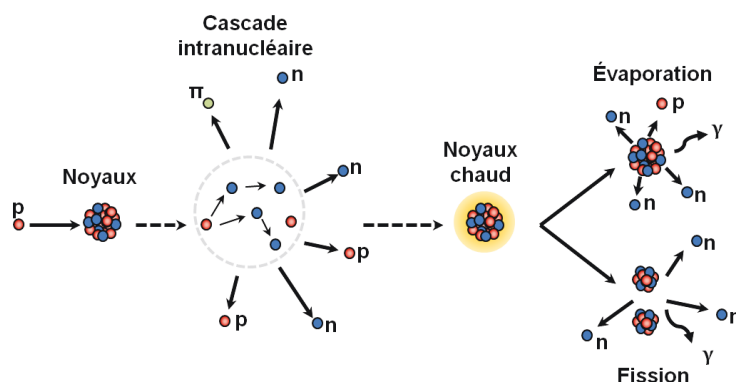


Figure 2.3: Schéma de principe de la réaction de spallation.

Dans le cadre de cette étude, la réaction de spallation nous intéresse pour sa capacité de production de neutrons. Cette dernière dépend principalement de l'énergie et de la nature de la particule incidente ainsi que du nombre de masse du noyau cible A et de sa densité. Pour une énergie et une particule incidente fixées, une valeur de A et une densité élevée sont plus favorables à la production de neutrons.

C'est la raison pour laquelle des études de cible de spallation ont été menées sur des noyaux comme le plomb ou le bismuth pour produire des neutrons. Le terme de cible de spallation

désigne le matériau soumis à un faisceau de particules produisant des réactions de spallation. Par exemple, l'interaction d'un proton de 1 GeV sur une cible épaisse de plomb libère plus d'une vingtaine de neutrons.

Dans le cadre du développement d'une source intense de neutrons pour les ADS, la cible développée par le projet MEGAPIE (MEGAwatt Pilot Experiment) [21] constitue une référence dans le domaine. Cette expérience est le premier couplage d'un accélérateur et d'une cible de spallation de métal liquide. La cible est composée d'un eutectique de plomb-bismuth qui a l'avantage d'avoir une température de fusion relativement basse, environ 125°C, comparée à celle du plomb qui est de 325°C [22]. L'utilisation d'une phase liquide facilite également son refroidissement.

2.3.2 Principe de fonctionnement d'un ADS

Un cœur est dit sous-critique si son coefficient de multiplication (k_{eff}) est inférieur à 1 (voir partie 1.2.2). La réaction en chaîne, en son sein, tendra donc à s'arrêter naturellement. Afin de maintenir la réaction, une source de neutrons doit alimenter le cœur. Généralement, la technique envisagée pour entretenir le cœur est le couplage d'un accélérateur de protons et d'une cible de spallation permettant de produire un grand nombre de neutrons. C'est la raison pour laquelle le terme de réacteur sous-critique piloté par accélérateur ou l'acronyme ADS (Accelerator Driven System) est utilisé pour les systèmes sous-critiques. Les principaux composants d'un ADS standard sont représentés sur le schéma 2.4.

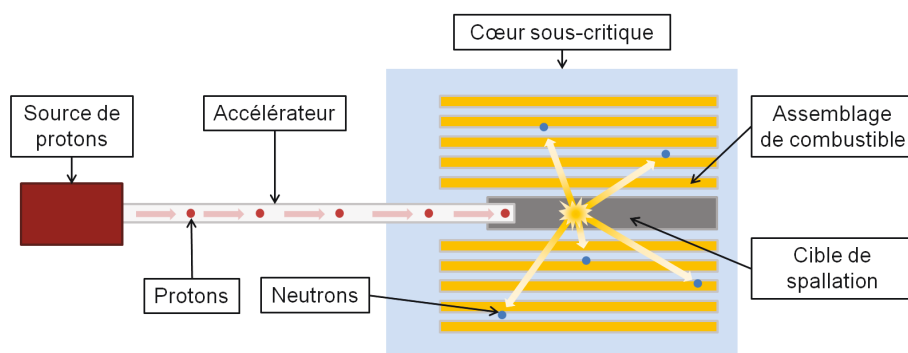


Figure 2.4: Schéma de principe d'un ADS

2.3.3 Influence de la source de neutrons

Comme nous l'avons présenté dans la partie 1.2.2, un milieu multiplicateur est caractérisé par son coefficient de multiplication noté k_{eff} . Un réacteur sous-critique a la particularité d'être alimenté par une source. Les neutrons issus de cette dernière dépendent de la source et de l'environnement dans lequel ils se propagent.

Les premiers neutrons sources, émis au centre de la zone de combustible, se multiplient et dès la deuxième génération, le spectre des neutrons produits possède une distribution énergétique correspondant à celle des neutrons de fission. La distribution spatiale évolue progressivement jusqu'à l'obtention d'une distribution dite « stabilisée ».

Ainsi un réacteur sous-critique couplé à une source de neutrons est caractérisé par son facteur de multiplication source k_s . Le nombre de neutrons dans la chaîne de fission initiée par un neutron source est alors défini par :

$$1 + k_1 + k_1 k_2 + k_1 k_2 k_3 + \dots + k_1 k_2 k_3 \dots k_i + \dots = \sum_{i=0}^{+\infty} \left(\prod_{j=0}^i k_j \right) = \sum_{n=0}^{+\infty} k_s^n = \frac{1}{1 - k_s} \quad (2.1)$$

Dans cette expression, k_i est le facteur de multiplication de la génération i , avec $k_0=1$ qui représente le neutron source initiant la réaction en chaîne. Le coefficient k_s représente le facteur de multiplication moyen de chaque génération de cette chaîne de réactions.

Le facteur k_s décrit donc mieux la multiplication des neutrons dans un réacteur sous-critique comparé au k_{eff} qui ne prend pas en compte la source de neutrons. Cependant lorsque cette dernière est arrêtée c'est le facteur de multiplication effectif qui régit la multiplication des neutrons dans le système. Le k_{eff} est donc un paramètre important pour la sûreté du réacteur. Pour cette raison, nous étudierons par la suite principalement le k_{eff} lors de l'étude des systèmes sous-critiques.

2.3.4 Histoire de l'ADS et expériences en cours

Bref historique des réacteurs sous-critiques

Les prémisses des ADS remontent aux années 80. L'étude d'un réacteur sous-critique couplé à un accélérateur est, par exemple, abordé par K. Furukawa et son équipe [23]. Le concept alors étudié est un ADS à sels fondus visant à mettre en place une filière surgénératrice à partir d'un cycle ^{232}Th - ^{233}U . Puis en 1992, un concept électrogène et transmutateur d'actinides et de produits de fission à vie longue est proposé par C. Bowman [24]. Il utilise un combustible liquide dans des conduits de graphite. Il a un spectre thermique avec un flux très intense. En 1994, C. Rubbia propose un concept d'amplificateur d'énergie dédié à la production d'électricité [25] [26]. Le terme d'amplificateur est relié au fait que dans un cœur sous-critique, l'apport de particules ayant une certaine énergie peut en produire beaucoup plus. Ce réacteur à neutrons rapides utilise du plomb comme caloporteur et un combustible au thorium afin de limiter la production d'actinides mineurs. La transmutation de certains produits de fission est également proposée.

Les expériences GUINEVERE et MYRRHA

Nous pouvons relever que l'expérience GUINEVERE (Generation of Uninterrupted Intense NEutrons at the lead VENus REactor) [27] a couplé en 2011 un réacteur sous-critique à caloporteur plomb avec une source externe de neutrons [28]. Cette première mondiale a été réalisée au SCK-CEN (Centre d'Étude de l'Énergie Nucléaire) à Mol en Belgique en collaboration avec le CEA et le CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique).

Dans cette expérience, l'accélérateur fournit des particules légères (ions, deutons) de 250 keV, interagissant avec une cible de tritium pour alimenter le cœur en neutrons. Bien que ce système ait une puissance proche de zéro, c'est une première étape dans l'étude des ADS. Cette expérience soutenue par le projet européen EUROTRANS (EUROpean research programme for the TRANSmutation of high level nuclear waste in an accelerator driven system) est poursuivie dans le cadre du projet FREYA (Fast Reactor Experiments for hYbrid Applications) du septième PCRD (Programme Cadre de Recherche et Développement) européen.

Le projet MYRRHA (Multi-purpose hYbrid Research Reactor for High-tech Applications) [22] [29] initié en 1998 est l'étape suivante dans l'étude des réacteurs sous-critiques. Son caloporteur et sa cible de spallation sont un mélange de plomb-bismuth. Le faisceau de protons de 350 MeV et d'une intensité de 5 mA devrait permettre d'atteindre une puissance thermique d'environ 50 MW. Le coefficient de multiplicité du cœur choisi est 0.95.

Cet ADS permettra de démontrer à son échelle la faisabilité technologique de l'ADS et de la transmutation. Il sera ensuite possible de passer à une dimension industrielle de la transmutation avec des réacteurs sous-critiques de puissances plus élevées.

2.3.5 Le futur démonstrateur industriel européen EFIT

Présentation du concept EFIT

En Europe, le concept EFIT (European Facility for Industrial Transmutation) est étudié pour la transmutation en ADS à l'échelle industrielle dans le cadre du projet EUROTRANS [30] [31]. Il en existe deux versions, l'une avec un caloporteur en plomb et l'autre gazeux. Nous ne décrivons ici que le premier car c'est le système de référence utilisé dans les études de scénario du CEA (Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives) et de ses collaborateurs industriels [32].

L'ADS EFIT à caloporteur plomb est composé d'un accélérateur de protons de 800 MeV atteignant une intensité de 20 mA. Son cœur sous-critique a une puissance thermique proche de 400 MW. Il utilise 3 zones de combustibles différents afin d'obtenir un flux neutronique radial et donc une densité de puissance relativement homogène. Le caractère très corrosif du plomb limite la durée d'irradiation à 3 ans.

Le concept EFIT permet de transmuter environ 150 kg d'actinides mineurs pour une année d'irradiation à pleine puissance. Cette masse est relativement faible comparée aux près de 5400 kg.an⁻¹ [33] produits dans un parc nucléaire français, de 60 GW électrique, composé de REP multi-recyclant le plutonium. Le potentiel de l'EFIT semble alors relativement limité s'il est dédié uniquement à la transmutation. Il faudrait près de 36 ADS pour incinérer la totalité de la masse générée annuellement.

Comparaison de l'ADS EFIT avec le SFR

Les limites de ce concept sont mises en relief lorsqu'il est comparé aux réacteurs à neutrons rapides critiques. Dans le cadre des études françaises, la transmutation est principalement étudiée avec des SFR [32]. Ces réacteurs ont une durée d'irradiation de l'ordre de 5 ans et donc supérieure à celle de l'EFIT. Cela signifie, pour des temps de refroidissement équivalents, un temps de cycle plus long pour les SFR. Il y a alors moins de mouvements de matières hautement radioactives dans le parc et moins de manutentions associées. C'est un premier point négatif pour l'ADS.

De plus, sa faible densité de puissance est également défavorable à l'EFIT. Elle est de l'ordre de 100 W.cm⁻³ [31] alors qu'elle est supérieure à 200 W.cm⁻³ pour le SFR [34]. Or, la densité de puissance fixe la masse de noyaux lourds nécessaire pour produire une puissance donnée. Plus elle est faible, plus la masse de combustible en cœur est élevée et en conséquence plus l'inventaire dans le cycle augmente. Donc, les masses en réacteurs, mais aussi en mouvement, ou encore entreposées et à traiter sont importantes.

L'avantage de l'ADS EFIT est son cœur sous-critique. Il permet de charger plus fortement le combustible en actinides mineurs tout en conservant un niveau de sûreté raisonnable. Ce n'est pas le cas d'un réacteur critique.

En effet, le pilotage d'un réacteur critique est permis par les neutrons retardés émis lors d'une fission par les produits de fission (voir partie 1.2.4). Or, leur proportion dépend de la composition du combustible, car la nature des produits de fission créés dépend du noyau qui fissionne.

La fission des actinides mineurs émet en moyenne moins de neutrons retardés que celle de l'uranium ou du plutonium. Par exemple, le taux de neutrons retardés dans un SFR utilisant du MOX est d'environ 0.004 [35], en comparaison celui de l'EFIT chargé en actinide mineurs est autour de 0.0015 [31]. Le pilotage d'un réacteur critique deviendrait donc plus délicat en présence d'une forte proportion d'actinides mineurs.

Les études de transmutation en RNR prévoient donc deux approches [32]. La première méthode est l'utilisation d'un combustible homogène contenant une très faible quantité d'actinides mineurs (de 2 à 5 % des noyaux lourds). La deuxième technique consiste à utiliser un combus-

tible hétérogène avec des couvertures plus fortement enrichies (entre 10 et 20 % des noyaux lourds) en périphérie du cœur où leur impact est plus faible. Cela implique, pour la transmutation de l'ensemble des actinides mineurs produits, l'utilisation de tous les réacteurs du parc nucléaire dans le premier cas et des trois quarts pour le deuxième.

Cependant, la faible fraction de neutrons retardés augmente la rapidité de changement de puissance du réacteur, cela pourrait aboutir à l'emballement de la réaction en chaîne. Il est donc nécessaire pour un ADS fortement chargé en actinides mineurs de fonctionner avec un k_{eff} très inférieur à un, afin de conserver un écart suffisant avec un régime critique. Le concept EFIT est étudié pour avoir un coefficient de multiplication de 0.97.

2.3.6 Augmentation du potentiel de transmutation d'un ADS

Pour accroître le potentiel de transmutation d'un ADS, nous avons donc pour objectif d'augmenter la puissance du cœur. Plus d'actinides mineurs seront alors transmutés par unité de temps dans un réacteur sous-critique, plus le nombre d'ADS nécessaire pour incinérer les actinides mineurs produits par le parc nucléaire sera diminué. Nous souhaitons également améliorer la densité de puissance de manière à optimiser la masse de noyaux lourds irradiée et la cinétique du cœur. Ainsi les inventaires en cycle seront diminués. Il est enfin préférable, si possible, d'allonger la durée d'irradiation de l'ADS pour diminuer la fréquence du renouvellement du combustible du cœur complet et de l'inventaire en cycle.

Tout d'abord, la durée d'irradiation de l'EFIT plomb est grandement liée à son caloporteur. Le caractère fortement corrosif du plomb détériore rapidement les matériaux avec lesquels il est en contact. Pour cette raison, le cycle des réacteurs au plomb ne dépasse généralement pas trois ans. Cependant, certains systèmes ont été étudiés avec des durées d'irradiation de 5 ans comme le concept BREST (Bistrii Reactor Estesvennoy bezopasnosti so Svintsovim Teplonositelem) [36].

Mais, il existe d'autres caloporteurs permettant d'obtenir un spectre rapide. Le principal RNR étudié en France dans le cadre des réacteurs de quatrième génération est à caloporteur sodium. Le cycle d'irradiation de ce type de cœurs est prévu pour plus de 5 ans.

La température d'utilisation des crayons ne doit pas dépasser certaines limites afin de respecter les caractéristiques du combustible. Mais le flux neutronique dans le cœur est fortement corrélé à la cible de spallation. Si on utilise un combustible homogène dans un système sous-critique avec un k_{eff} égal à 0.97, le flux neutronique est très intense au centre et décroît rapidement avec le rayon. La puissance est alors limitée par la température des crayons les plus proches des cibles et la densité de puissance à la dépendance radiale du flux neutronique.

La figure 2.5 est l'illustration de ce phénomène. Elle a été obtenue à partir de la simulation

d'un ADS très simplifié, réalisé avec le programme MCNPX (voir la section 3.1), et correspondant au schéma 2.6.

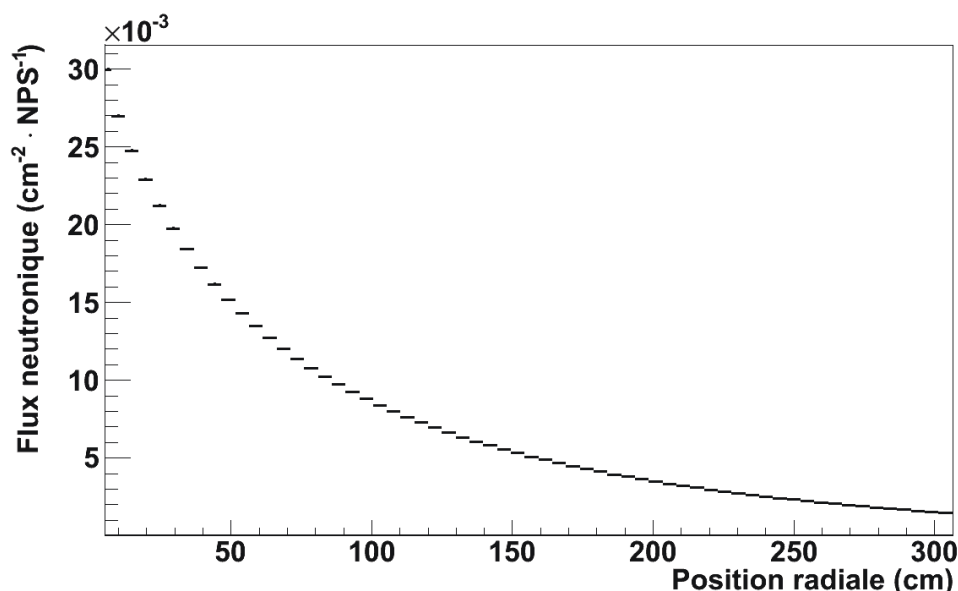


Figure 2.5: Flux neutronique radial normalisé par proton (NPS) d'un ADS simplifié. Les erreurs statistiques associées aux calculs sont reportées sur le graphique.

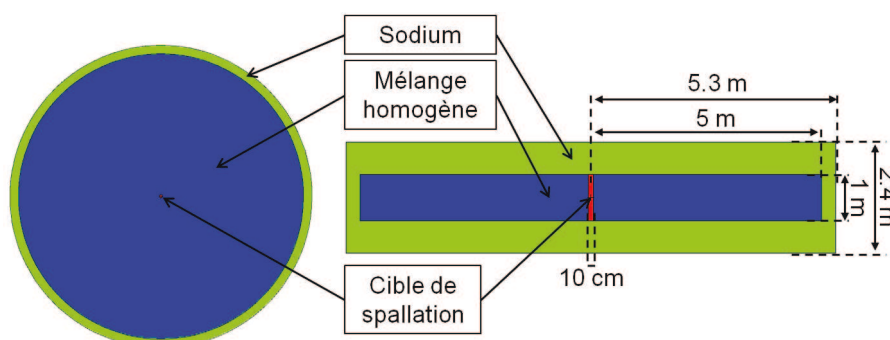


Figure 2.6: Schéma de l'ADS simplifié simulé pour obtenir la figure 2.5. À gauche la vue du plan axial et à droite la vue du plan radial.

Il contient en son centre une cible de spallation en Pb-Bi de 10 cm de diamètre, incluse dans un cylindre de 5 m de rayon représentant le cœur du réacteur contenant un mélange homogène d'oxyde d' ^{238}U , de ^{239}Pu et d'un caloporteur sodium dont les proportions molaires sont respectivement de 4.0 %, 1.6 %, 0.5 % et 93.9 %. La zone de combustible est choisie suffisamment grande pour limiter les fuites radiales. La cible de spallation et le cœur mesurent 1 mètre de haut. Ils sont entourés par du sodium seul.

Dans un premier temps, la densité du combustible et la proportion de sodium qu'il contient sont ajustées afin d'obtenir un coefficient de multiplication de 0.97. Puis de manière à avoir

une idée de la dépendance radiale du flux neutronique dans un ADS, nous appliquons une discrétisation cylindrique de la partie combustible du cœur, avec un pas de 10 cm. Des protons de 1 GeV sont alors émis au centre de la cible de spallation et le flux neutronique est extrait dans chaque région de combustible.

Nous pouvons observer une diminution de plus de deux tiers du flux neutronique en environ un mètre.

Pour le concept EFIT, la solution utilisée pour garder un flux neutronique radial relativement constant dans le cœur, est l'augmentation de la quantité de noyaux lourds avec l'éloignement à la cible [31]. C'est la raison pour laquelle, trois zones circulaires de combustibles sont définies autour de la cible de spallation. La différence entre la partie centrale et intermédiaire est une simple variation de proportion de noyaux lourds par rapport à la matrice inerte du combustible. Dans la région périphérique, le diamètre des crayons est élargi afin d'augmenter la quantité de combustible.

Cependant l'enrichissement du combustible en noyaux lourds influe sur le comportement du crayon. Les caractéristiques d'utilisation de ce dernier se dégradent avec l'augmentation de la proportion de ces isotopes. Par exemple, la température de fonctionnement des crayons diminue. De plus, le diamètre des crayons ne peut pas augmenter indéfiniment car leur espacement doit être adapté à l'écoulement du caloporteur utilisé et doit permettre le refroidissement du combustible. Donc, cette solution est limitée à une certaine taille de cœur.

Pour obtenir un flux neutronique plus homogène, nous nous sommes tournés vers une autre solution, l'utilisation de plusieurs cibles de spallation. Le principe est de disposer stratégiquement les cibles afin que la contribution de chacune permette d'obtenir un flux relativement homogène au centre du cœur. Avec cette approche, nous espérons augmenter sensiblement la puissance de l'ADS. Le dimensionnement de ce type de système sera l'objet du chapitre 4.

2.3.7 Concept ADS MUST

L'ADS MUST (MULTiple Spallation Target) est un ADS ayant la particularité d'avoir un cœur sous-critique accueillant plusieurs cibles de spallation comme le montre le schéma 2.7. Dans le cadre de cette thèse, seul le concept à trois cibles est étudié, mais, en théorie, il est tout à fait envisageable d'en considérer plus.

Pour ce type de réacteur, un unique accélérateur de protons de haute énergie est utilisé. Le faisceau est séparé en trois afin d'alimenter les cibles de spallation. Plusieurs méthodes sont techniquement envisageables pour cela, comme par exemple, l'utilisation d'une cavité radiofréquence avec un champ perpendiculaire au faisceau, ou encore un trou de faisceau basse énergie

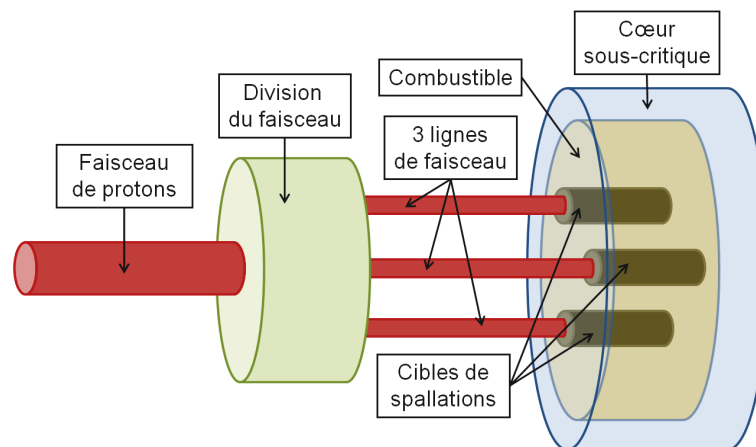


Figure 2.7: Schéma de principe d'un ADS MUST à 3 cibles de spallation.

permettant d'utiliser des aimants « kickers » rapides [37].

Outre les cibles de spallation, le cœur est composé de différents types d'assemblages : combustibles et réflecteurs en périphérie pour limiter les fuites neutroniques. Des emplacements d'assemblages sont laissés vides autour des cibles, en prévision de l'espace occupé par les différents composants qui lui seront associés (pompes, containers...) . Il est possible d'utiliser également des assemblages de contrôle permettant le maintien de la sous-criticité durant le cycle.

La méthode mise en place pour fixer l'ensemble de la géométrie de l'ADS et ses caractéristiques de fonctionnement fera l'objet du chapitre 4.

2.4 Scénarios électronucléaires double strate

2.4.1 Définitions

Scénarios électronucléaires

Un scénario électronucléaire est l'étude complète d'un parc nucléaire et de son évolution. Il part d'un parc initial composé de différents types de réacteurs avec leurs combustibles, les déchets associés et ceux produits antérieurement ainsi que les stocks d'éléments valorisables.

Ensuite, l'objectif est d'estimer son évolution. Elle dépend du temps de fonctionnement restant aux réacteurs initiaux et de nombreuses hypothèses. Par exemple, l'évolution est liée aux besoins énergétiques, aux ressources disponibles et à la maturité des technologies alternatives (nucléaires ou non). Les choix politiques sur le volume de la production électronucléaire dans le bouquet énergétique et sur la gestion des déchets sont évidemment un facteur important.

Le terme de scénario à l'équilibre est utilisé pour décrire un parc dont les principales caractéristiques restent constantes. Par exemple, si le nombre de réacteurs, leurs types et puissances

de fonctionnement ne changent pas, ils auront des besoins constants en combustible neuf et produiront toujours les mêmes déchets.

Dans nos études, nous utiliserons le terme de scénario à l'équilibre avec une condition supplémentaire sur la gestion du plutonium. En effet, la transmutation des actinides implique une stabilité de la quantité de plutonium au cours de cette période. Par conséquent, cet élément doit être multi-recyclé, et ne doit pas être produit en des proportions supérieures aux besoins des réacteurs. Le plutonium est donc à l'équilibre dans les réacteurs des deux strates du parc.

A l'inverse, si le parc est en cours de mutation, on parle alors de phase ou de scénario de transition. Par exemple, le déploiement d'une nouvelle génération de réacteurs implique un certain temps de mise à l'équilibre. Les proportions isotopiques du plutonium d'un combustible à l'équilibre de REP est différent de celui d'un SFR. Donc, le plutonium multi-recyclé présent dans un parc de REP à l'équilibre ne permet pas de fabriquer un combustible pour un SFR à l'équilibre dès sa mise en exploitation.

De nombreuses observables sont disponibles pour analyser un scénario. Il y a bien sûr les ressources nécessaires au fonctionnement des réacteurs et leurs inventaires au cours du cycle. Mais il est également intéressant d'estimer l'impact sur la gestion du parc, des manutentions, des mouvements de matières radioactives ou de la gestion des déchets à long terme. Il ne faut pas négliger non plus l'évolution de la sûreté des réacteurs et des installations du parc. Des approches économiques et sociologiques peuvent également être effectuées afin d'estimer l'influence des différentes stratégies (gestion du combustible, des déchets, déploiement de réacteurs...) mises en place. Ces exemples ne sont évidemment pas exhaustifs et sont grandement corrélés au contexte dans lequel sont réalisées les études.

Il est important de garder à l'esprit que ces scénarios sont des prospectives qui dépendent de nombreuses hypothèses. Il ne faut donc pas essayer d'en extraire des certitudes, mais des tendances ou des estimations destinées à être des supports lors des prises de décisions.

Définition d'un scénario double strate

Ce type de scénario est étudié dans le cadre de la transmutation en ADS. Le terme de double strate est utilisé pour un parc constitué de deux niveaux de réacteurs aux fonctions différentes. Le premier est composé de réacteurs dédiés à la production d'électricité et le second à la transmutation. Ainsi, dans nos études, les actinides mineurs produits dans la première strate sont envoyés vers la seconde pour être incinérés.

L'étude de la gestion des actinides mineurs a un sens seulement si la quantité de plutonium est stabilisée. En effet, la contribution à la radiotoxicité du combustible usagé de cet élément est dominante sur plusieurs centaines de milliers d'années. Le multi-recyclage du plutonium dans les réacteurs des deux strates est donc essentiel pour que la transmutation des actinides mineurs

ait un intérêt.

L'avantage de ces scénarios est de limiter, à des sites spécifiques, l'empreinte des combustibles destinés à la transmutation et ainsi d'éviter de toucher l'ensemble du parc. Par contre, la deuxième strate n'est généralement pas considérée comme productrice d'électricité.

Cependant, dans des études récentes de scénarios double strate, le potentiel électrogène des ADS est pris en compte. Par exemple, la puissance électrique du concept d'ADS EFIT est estimée à plus de 150 MW_e [32].

2.4.2 Scénarios et observables retenus

Les scénarios dépendent principalement de la variation de la production électronucléaire mondiale, car elle a une incidence directe sur les stratégies de déploiement ou non de nouvelles générations de réacteurs.

En effet, la ressource actuelle de l'énergie nucléaire est l'uranium et ses réserves à bas coût sont tarissables (voir partie 1.1.1). Une augmentation de la demande tendrait vers une raréfaction plus rapide de cette ressource. La conséquence directe d'une telle situation est un besoin rapide de réacteurs surgénérateurs.

Dans l'hypothèse inverse où la production reste stable ou diminue, les ressources sont suffisantes pour ne pas précipiter leur déploiement. Des réacteurs de troisième génération seraient utilisés, laissant plus de temps pour l'élaboration de nouveaux plans de gestion du parc.

L'axe de recherche de la loi française sur la séparation et la transmutation (voir partie 1.4) est dirigé par le CEA. Nos études étant réalisées dans ce cadre, nous prenons comme référence les travaux réalisés par ce centre de recherche [32]. Dans les scénarios étudiés les réacteurs régénérateurs de la première strate sont des réacteurs de type SFR et les réacteurs de troisième génération sont des EPR.

Le schéma 2.8 représente le principe des scénarios double strate étudié.

Les déchets produits dépendent grandement du type de réacteurs utilisés. Les systèmes à eau pressurisée produisent, par exemple, une masse d'actinides mineurs plus de deux fois supérieure à celle générée en SFR (tableau 2.4) et avec des proportions isotopiques très différentes. Cette observation s'explique par la différence de spectre neutronique. Des neutrons thermiques sont plus capturés par les noyaux lourds que des neutrons rapides. Ainsi la formation d'actinides mineurs est plus importante en REP ou en EPR. La gestion des actinides mineurs est donc totalement corrélée à la composition de la première strate.

Un autre critère important est le choix des éléments destinés à la transmutation, car le com-

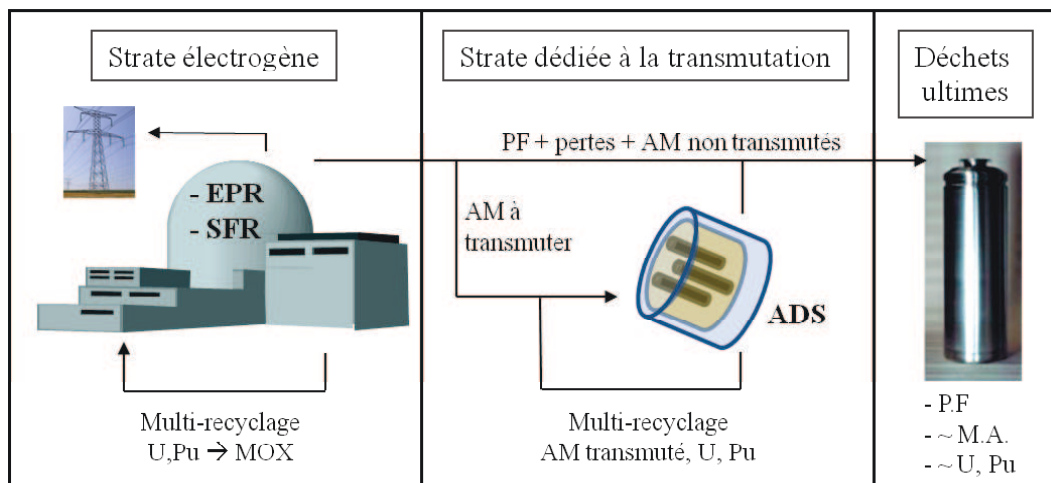


Figure 2.8: Schéma de principe d'un scénario double strate

Isotopes	Masses ($\text{kg} \cdot \text{GW}_e^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$)	
	REP	SFR
^{237}Np	15.998	4.60
^{241}Am	38.570	29.00
^{242m}Am	0.438	-
^{243}Am	24.545	5.60
^{242}Cm	-	0.01
^{243}Cm	0.088	-
^{244}Cm	9.204	1.20
^{245}Cm	1.578	-
^{246}Cm	0.066	-
^{247}Cm	0.001	-
Total	90.488	40.41

Tableau 2.4: Masses isotopiques des actinides mineurs produits en REP et en SFR multi-recyclant le plutonium, après 5 ans de refroidissement [33] [38]. Les « - » signifient que les masses sont respectivement inférieures à 0.0001 et 0.001 pour les colonnes « REP » et « SFR ».

bustible utilisé et les déchets produits en dépendent. Parmi les trois principaux noyaux, l'américium et le curium sont des noyaux extrêmement radiotoxiques (tableau 2.1) et dégageant une forte chaleur résiduelle. Cela implique d'importantes contraintes lors de leurs manipulations et de leur stockage. Il faut donc évaluer leur potentiel de transmutation et la valeur ajoutée associée.

Nous soulignerons tout de même la différence de production de ces deux noyaux dans des

réacteurs multi-recyclant le plutonium. Le curium est presque inexistant dans le combustible utilisé de SFR et est près de six fois moins abondant que l'américium dans le cas d'un REP.

De son côté le neptunium pose moins de problème lors de la fabrication du combustible avec notamment un facteur de dose 10^3 à 10^5 fois inférieur à celui de l'américium et du curium.

En général, les études effectuées sur la transmutation des actinides mineurs suivent deux stratégies. La première considère l'incinération des trois éléments et la seconde uniquement celle de l'américium.

Les études présentées ici sont effectuées dans le cadre des lois de 1991 et 2006 sur la gestion des déchets au sein du parc nucléaire français (voir partie 1.4). Elles ont pour but d'évaluer l'influence de la transmutation des actinides mineurs dans des scénarios double strate.

Le point de départ de tous les scénarios sera donc le parc actuel. Les réacteurs qui le composent devront être remplacés à la fin de leur exploitation suivant la politique et la stratégie de gestion mise en place. Dans les prospectives étudiées ici, nous supposons le maintien de la puissance nucléaire installée à son niveau actuel soit environ 60 GW_e .

Nous étudierons l'évolution de la strate électrogène illustrée par le schéma 2.9.

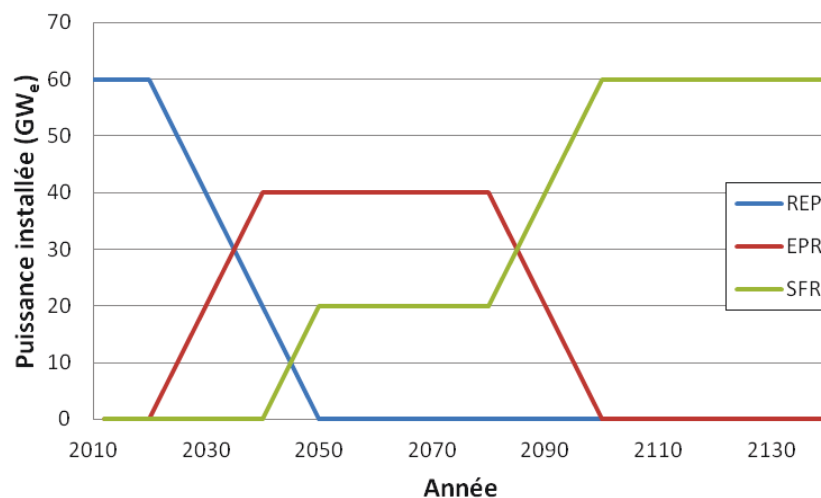


Figure 2.9: Schéma de principe du scénario double strate étudié.

Ce scénario suppose un passage rapide à la sur-génération. Il faudra tout de même le déploiement d'environ 40 GW_e d'EPR, pour laisser le temps aux SFR de gagner en maturité. Ensuite, à partir de 2050 environ, ils seront mis en place, dans un premier temps, pour compléter le parc, avant de remplacer totalement les EPR.

Pour cette évolution de la première strate, nous étudierons l'influence d'une seconde composée d'ADS MUST à trois cibles de spallation. Ils seront déployés vers 2050, tout comme

les principaux scénarios étudiant l'utilisation du concept EFIT [32]. Cela suppose des efforts conséquents de développement des ADS.

Dans le parc précédent, nous aborderons deux stratégies de transmutation pour les raisons déjà évoquées. Soit tous les actinides mineurs sont transmutés, soit seul l'américium l'est.

La gestion du plutonium dépendra des stocks nécessaires au déploiement des différents réacteurs. Mais lorsque le parc est à l'équilibre, le plutonium sera multi-recyclé afin de ne pas l'accumuler.

Les déchets vitrifiés avant la mise en place de stratégies de transmutation constitueront le stock initial de déchets des différents scénarios. Ces déchets seront considérés comme non transmutables.

L'objectif de ces études est d'estimer le nombre d'ADS MUST nécessaire à la transmutation des actinides mineurs et de comparer les inventaires en cycle. Nous évaluerons également la composition et la radiotoxicité associée, des déchets ultimes destinés à un stockage définitif.

Chapitre 3

Outils de simulation et applications aux réacteurs sous-critiques

3.1 MCNP(X)

Le programme MCNP (Monte Carlo N-Particle) [39], développé au laboratoire national de Los Alamos, tient son nom de la méthode de tirage aléatoire utilisée lors des simulations. Ce code transporte des particules dans une géométrie et calcule de façon probabiliste les grandeurs caractéristiques de leurs interactions avec les éléments du milieu. Il est ainsi possible d'extraire le flux neutronique dans un système à trois dimensions, ou le coefficient de multiplication si le milieu contient des noyaux fissiles. MCNP permet le transport de nombreuses particules comme les photons, les électrons, les neutrons, les protons...

Par contre, lors des simulations, le milieu n'évolue pas. Par exemple, si une particule provoque la fission d'un noyau, l'interaction est prise en compte dans les calculs mais le noyau ne sera pas modifié. Les simulations MCNP sont des calculs qualifiés de « statiques ».

Pour l'étude des ADS, il peut être nécessaire de transporter des protons de 1 GeV. Pour cette raison, l'ensemble des résultats présentés ont été obtenus avec le programme MCNPX (Monte Carlo N-Particle eXtended) [40] version 2.7.d car son extension aux hautes énergies permet notamment de simuler la réaction de spallation.

3.1.1 Principe

La première étape pour une simulation avec MCNPX est la description de la géométrie et des matériaux du système. La source est également définie par le type de particules émises, leurs positions initiales et leurs énergies.

La simulation commence par le calcul des équations 3.1 et 3.2 afin de déterminer le libre par-

cours moyen ($\lambda(E)$) des particules d'énergie E à partir des sections efficaces macroscopiques du milieu ($\Sigma^{tot}(E)$). Dans l'équation 3.1, N_i est le nombre de noyaux i par cm^3 et $\sigma_i^{tot}(E)$ est la section efficace microscopique totale d'interaction du noyau i pour cette énergie en cm^2 .

$$\Sigma^{tot}(E) = \sum_i N_i \sigma_i^{tot}(E) \quad (3.1)$$

$$\lambda(E) = \frac{1}{\Sigma^{tot}(E)} \quad (3.2)$$

$$l(E) = -\lambda(E) \ln(1 - \xi_1) \quad (3.3)$$

L'équation 3.3 permet ensuite d'effectuer le transport des particules. La distance parcourue avant la première interaction (l) est calculée à l'aide d'un tirage aléatoire du nombre ξ_1 compris dans l'intervalle $[0, 1[$. Si la trajectoire de la particule traverse une surface séparant deux parties du système, les étapes précédentes sont effectuées une nouvelle fois à partir du point de sortie de la cellule, en recalculant les sections efficaces macroscopiques du nouveau milieu. Dans le cas où la particule reste dans la même partie du système, le noyau avec lequel elle interagit est alors directement déterminé.

Pour cela un nouveau nombre aléatoire ξ_2 compris dans $[0, 1[$ est tiré. Parmi les N noyaux constituant le matériau, seul le noyau k satisfait l'expression 3.4 et c'est avec lui que l'interaction de la particule transportée sera calculée.

$$\sum_{i=1}^{k-1} \Sigma_i^{tot}(E) \leq \xi_2 \sum_{i=1}^N \Sigma_i^{tot}(E) < \sum_{i=1}^k \Sigma_i^{tot}(E) \quad (3.4)$$

Dans cette équation les $\Sigma_i^{tot}(E)$ sont les sections efficaces macroscopiques totales (capture, fission...) des noyaux i pour une particule d'énergie E . Nous pouvons remarquer que plus la section efficace macroscopique de l'isotope k est grande, plus l'intervalle de valeur de ξ_2 sélectionnant ce noyau est important.

Le type de réaction produite par l'interaction est alors déterminé. Pour cela, un nouveau tirage aléatoire est effectué dans l'intervalle $[0, 1[$ et est noté ξ_3 . La réaction r sélectionnée, parmi les R réactions possibles, satisfait l'expression 3.5. Ainsi, plus une section efficace microscopique $\sigma_i(E)$ est grande par rapport aux autres, plus sa probabilité d'être tirée au sort est élevée.

$$\sum_{i=1}^{r-1} \sigma_i(E) \leq \xi_3 \sum_{i=1}^R \sigma_i(E) < \sum_{i=1}^r \sigma_i(E) \quad (3.5)$$

Suivant la réaction r , le transport de la particule diffère. Par exemple, si un neutron est capturé, son transport s'arrête, dans le cas du mode de capture « analogue », ou il est réémis

avec un poids statistique plus faible si le mode de capture « implicite » est utilisé.

Si le mode de transport induit les photons, ils seront générés puis transportés jusqu'à leur absorption.

Lorsqu'un neutron subit une diffusion inélastique ou provoque une fission, une ou plusieurs particules peuvent être réémises. Leurs directions et énergies d'émission sont alors calculées, toujours à l'aide de tirages aléatoires, suivant les lois correspondant à la réaction. Par exemple, les énergies des neutrons de fission sont calculées à partir d'un spectre de Watt [41]. Dans le cas de la diffusion élastique d'un neutron d'énergie E_0 sur un noyau de masse A , son angle de diffusion θ_{CM} dans le centre de masse est tiré aléatoirement et son énergie après le choc E_1 est calculée à partir de l'équation 3.6.

$$E_1 = E_0 \frac{1 + A^2 + 2A \cos \theta_{CM}}{(1 + A)^2} \quad (3.6)$$

Ces calculs sont réalisés un grand nombre de fois afin d'extraire un comportement moyen. Plus le nombre de particules simulées est grand pour un système donné, plus l'erreur statistique associée au résultat diminue et donc plus la précision du résultat est améliorée.

3.1.2 Source de particules

Pour chaque simulation avec le programme MCNPX, un des quatre types de sources de particules doit être défini. Le premier est une source fixe, le deuxième est une source critique, le troisième une source de surface et le dernier type est fourni par l'utilisateur.

Nous présentons ici les deux types de sources utilisées dans ce travail, les sources fixes et critiques.

Une source fixe est utilisée dans le code MCNPX avec la carte « SDEF ». Elle est définie par de nombreux paramètres. Nous en citerons seulement quelques uns. Les premiers sont le type de particules de la source comme des neutrons ou des protons et également leur énergie. Il y a également la position et la distribution de la source de particules. Elle peut avoir, par exemple, un ou plusieurs sites ponctuels d'émission. Ou encore, la direction d'émission des particules peut être fixée comme pour simuler un faisceau de particules.

Avec une source fixe, toutes les particules, qu'elles soient émises par la source ou produites lors d'interactions, sont transportées jusqu'à leurs disparitions si elles font partie du type de particule suivi (neutron, proton...). Elles sont considérées perdues notamment si elles sortent du système ou si elles sont absorbées.

Si le système simulé est constitué de noyaux fissiles et que le coefficient de multiplication est supérieur à 1, alors une source fixe n'est pas adaptée au problème dans la mesure où la

première particule se multiplierait à l'infini. C'est pourquoi un calcul, dans lequel la source est variable, basé sur l'utilisation de la carte « KCODE » est à privilégier dans un tel cas. Nous appellerons un calcul avec une source critique tout calcul MCNPX réalisé avec cette carte.

Les particules émises par une source critique sont des neutrons de fission dont l'énergie est tirée à partir d'un spectre de Watt [41]. L'utilisateur définit le nombre de neutrons transportés de leur site d'émission jusqu'à leur première absorption. Cet ensemble de neutrons forme une génération et le transport de celle-ci jusqu'à leur absorption est appelé cycle. Le nombre de cycles est un autre paramètre à fixer.

La position des sites d'émission initiaux peut être définie au préalable, mais ensuite chaque position où un neutron est absorbé est mémorisée et peut être utilisée comme un site d'émission de la nouvelle génération de neutrons. La répartition des sites change donc à chaque cycle et les positions de départ des neutrons suivant sont tirées au hasard parmi les sites d'absorption. La source a convergé une fois la distribution spatiale de la source constante. Si la source n'a pas convergé, les valeurs obtenues lors des calculs effectués par le code ne sont pas représentatives du système si celui-ci est fini ou hétérogène.

Pour cette raison, dans la définition d'une source critique, deux paramètres sont disponibles et déterminent un nombre de cycles différents. Les premiers sont ceux qualifiés d'« inactifs » et dont l'objectif est de propager la source jusqu'à obtenir une source convergée. Au cours de ces cycles, le transport des neutrons est réalisé mais le calcul des grandeurs physiques n'est pas effectué. Le deuxième type de cycles sont les cycles « actifs », lors desquels le programme calcule les grandeurs physiques. À la fin de la simulation, les valeurs finales prennent en compte l'ensemble des résultats de chaque cycle actif.

Si l'utilisateur possède déjà une source convergée issue d'une simulation antérieure du même système, il est possible de la réutiliser afin de gagner du temps, en limitant le nombre de cycles inactifs. Par contre si un matériau est modifié, il est tout de même conseillé d'effectuer quelques cycles inactifs afin de s'assurer de la convergence de la source.

3.1.3 Base de données et modèles

Les simulations avec le code MCNPX s'appuient sur l'utilisation de bases de données de sections efficaces. Il en existe plusieurs pouvant différer dans certaines gammes d'énergie et pour certains isotopes. Les principales bases pour les neutrons sont ENDF (Evaluated Nuclear Data File) [10], JENDL (Japanese Evaluated Nuclear Data Library) [42] et JEFF (Joint Evaluated Fission and Fusion) [43] qui sont respectivement issues de programmes de recherche américains, japonais et européens.

Leurs discordances peuvent conduire à des résultats différents. Il est donc important de connaître lesquelles sont utilisées au cours d'une simulation. Pour cette étude, nous avons fait le choix de travailler avec les bases de données ENDF (Evaluated Nuclear Data File) et priori-

tairement la version B7 [10].

Cependant ces bases de données ne permettent pas de simuler l'ensemble des réactions nucléaires. Pour les réactions au-delà de 20 MeV, le code de simulation fait appel à des modèles. Le choix est en outre laissé à l'utilisateur de s'appuyer sur des modèles même si des bases existent. Mais par défaut, ils sont utilisés uniquement en absence de base. C'est cette option qui a été utilisée pour les simulations effectuées avec le code MCNPX.

Le phénomène de spallation nécessite l'utilisation de modèles décrivant l'ensemble de la réaction : la cascade intranucléaire et l'évaporation. Parmi les modèles implémentés par défaut dans le programme MCNPX, seul le modèle CEM2k [44] décrit les deux phases de ce phénomène. Par contre, il existe de nombreux modèles correspondant à la cascade intranucléaire comme par exemple Bertini [45], INCL4 [46] ou ISABEL [47]. D'autres modèles décrivent l'évaporation, nous pouvons citer Dresner [48] et Ablat [49]. Il est donc possible d'associer un modèle correspondant à chacune des phases de la réaction. Cependant certains couples de modèles sont plus compatibles que d'autres et reproduisent mieux les réactions [50] [51]. L'évaluation de ces modèles sont réalisés à partir des taux de production des résidus de spallation. Des comparaisons sont réalisées entre expériences et simulations sur des isotopes ciblés qui permettent de mettre en avant les lacunes de certains modèles.

Pour les études que nous avons menées, la cible de spallation sert avant tout à la création de neutrons. Or, l'ensemble des modèles sont en accord sur ce point. Nous choisissons donc les modèles dont le temps de calcul est le plus rapide, en l'occurrence : Bertini et Dresner.

3.2 MURE

Le programme MURE (MCNP Utility for Reactor Evolution) [52] est développé par des laboratoires de l'IN2P3 (Institut national de physique nucléaire et de physique des particules) dont principalement le LPSC (Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie) de Grenoble et l'IPN (Institut de Physique Nucléaire) d'Orsay. Ce programme C++ a été réalisé afin de simuler l'évolution du combustible nucléaire en cœur à partir de calculs réalisés avec le code MCNP. Mais, il a depuis évolué et propose désormais de nombreuses options dont un module de thermo-hydraulique que nous présenterons plus en détails.

Dans notre étude, le programme MURE est utilisé avec la version 2.7.d du code MCNPX.

3.2.1 Equation de Bateman

MURE calcule l'évolution d'un système soumis à un flux neutronique ϕ , à l'aide de l'équation de Bateman 3.7. Cette relation fait le bilan des disparitions et des apparitions des N_i noyaux i sur un intervalle de temps dt .

Le premier terme correspond à la disparition du noyau i par réaction nucléaire (capture, fission...). Le deuxième représente sa formation par des interactions subies par un noyau j . Ensuite, le troisième terme est la perte de l'isotope considéré par décroissance naturelle et le dernier correspond à sa création par l'ensemble des noyaux j dont les canaux de décroissances mènent à l'isotope i .

$$\frac{dN_i}{dt} = \underbrace{-\sigma_i^{abs}\phi N_i + \sum_{j \neq i} \sigma_{j \rightarrow i} \phi N_j}_{\text{Réaction}} - \underbrace{\lambda_i N_i + \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j}_{\text{Décroissance}} \quad (3.7)$$

Les différentes variables de l'équation de Bateman sont :

- N_i , le nombre de noyaux i
- $\sigma_i^{abs}\phi$, le taux de réaction d'absorption du noyau i
- $\sigma_{j \rightarrow i}\phi$, le taux de réaction du noyau j produisant i
- λ_i , la constante de décroissance totale du noyau i
- $\lambda_{j \rightarrow i}$, la constante de décroissance du noyau j vers le noyau i .

Dans la notation utilisée pour l'écriture de l'équation de Bateman, les taux de réaction $\sigma_i^{abs}\phi$ et $\sigma_{j \rightarrow i}\phi$ sont définis par l'équation 3.8. Dans cette expression, $\sigma(E)$ et $\phi(E)$ sont la section efficace (σ_i^{abs} ou $\sigma_{j \rightarrow i}$) et le flux neutronique en fonction de l'énergie du neutron incident.

$$\sigma\phi = \frac{\int \sigma(E) \cdot \phi(E) dE}{\int dE} \quad (3.8)$$

Cette équation peut également s'écrire sous forme matricielle 3.9 où \vec{N} est un vecteur contenant l'ensemble des noyaux du système et A une matrice décrivant l'ensemble des contributions de chacun. Chaque élément A_{ij} (expression 3.10) de la matrice correspond à la création du noyau i par le noyau j et les éléments A_{ii} déterminent (expression 3.11) les disparitions du noyau i par décroissances et réactions nucléaires.

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = A \vec{N} \quad (3.9)$$

$$A_{ij} = \sigma_{j \rightarrow i}\phi + \lambda_{j \rightarrow i} \quad (3.10)$$

$$A_{ii} = -\lambda_i - \sigma_i^{abs}\phi \quad (3.11)$$

MURE résout analytiquement cette équation par la méthode Runge-Kutta d'ordre 4 entre deux pas en temps.

3.2.2 Principe d'évolution dans MURE

Le principe de simulation standard avec le programme MURE est résumé par la figure 3.1. La première étape est la description du système étudié. Il est par exemple nécessaire de définir la géométrie du système et les matériaux composant les différentes cellules. La durée de l'évolution souhaitée et sa discrétisation sont aussi précisées, de même que la puissance du cœur. D'autres informations peuvent être stipulées comme, par exemple, les bases de données de sections efficaces (ENDF, JEFF...) utilisées.

À partir de ces informations le code MURE construit un arbre des noyaux contenant pour chacun, tous les liens de filiations de décroissances et également de réactions. Il servira à résoudre l'équation de Bateman.

Ensuite un premier fichier d'entrée du système initial est créé pour le code MCNPX. Deux méthodes de calcul des éléments de matrice de l'équation de Bateman sont alors possibles. La première est la méthode par défaut qui extrait directement à l'aide de MCNPX les taux de réaction pour chaque isotope afin de remplir directement la matrice d'évolution. Cette méthode demande des temps de calculs importants car MCNPX doit aller chercher à chaque interaction les valeurs des sections efficaces pour calculer le taux de réaction correspondant. La deuxième méthode, qualifiée de « multigroupe », consiste à extraire à l'aide de MCNP le flux neutronique discrétisé en plusieurs groupes d'énergie (17900 par défaut). Les taux de réaction sont alors calculés par le programme MURE à partir des bases de données de sections efficaces à l'aide de l'équation 3.8. Ainsi, les taux de réaction sont calculés une seule fois par cellule à la fin de la simulation MCNP au lieu de l'être à chaque interaction.

Une fois les taux de réaction obtenus, le programme MURE résout alors l'équation de Bateman 3.9. Sur cette période, le flux neutronique et les sections efficaces sont supposés constants. Autrement dit, le système ne doit pas subir de changements trop importants sur cette durée.

La composition du système au pas en temps suivant est alors obtenue. Ces opérations sont répétées jusqu'au temps final de la simulation.

L'évolution d'un système est donc déterminée par une succession de calculs avec le code MCNP ou MCNPX dans notre cas et de résolutions de l'équation de Bateman.

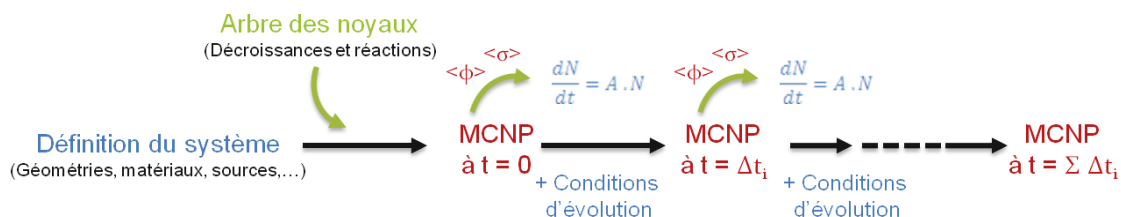


Figure 3.1: Schéma de principe d'une simulation MURE

3.2.3 Interface graphique

Le programme MURE dispose d'une interface graphique afin de visualiser les résultats obtenus lors d'une évolution. Elle utilise le système d'analyse de données ROOT développé par le CERN (Organisation européenne pour la recherche nucléaire) [53].

Cette interface permet un accès pratique aux résultats comme l'évolution du coefficient de multiplication ou encore des quantités isotopiques. Les valeurs des sections efficaces microscopiques moyennées sur le flux en énergie $\langle \sigma \rangle$ définies par l'équation 3.12 sont également disponibles. Dans l'expression 3.12, $\sigma(E)$ est la section efficace du noyau considéré en fonction de l'énergie du neutron incident et $\phi(E)$ est le flux de neutrons ayant cette énergie.

$$\langle \sigma \rangle = \frac{\int \sigma(E) \cdot \phi(E) dE}{\int \phi(E) dE} \quad (3.12)$$

Le flux neutronique moyen $\bar{\phi}$ des cellules sélectionnées est aussi accessible. Il est défini par l'équation 3.13 dans laquelle ϕ_i est la valeur du flux dans la cellule i et V_i est le volume de celle-ci.

$$\bar{\phi} = \frac{\sum_i \phi_i V_i}{\sum_i V_i} \quad (3.13)$$

Enfin des informations sur l'évolution de l'inventaire du combustible après irradiation sont disponibles. Cela permet, par exemple, de déterminer la radiotoxicité du combustible utilisé d'un réacteur. Pour cela, le code s'appuie sur l'utilisation de bases de données contenant les facteurs de dose des différents noyaux considérés [54].

3.2.4 Gestion du k_{eff}

Durant l'irradiation, l'évolution du combustible change la réactivité du cœur. Il est donc indispensable de s'assurer du maintien du k_{eff} à la valeur souhaitée à l'aide d'isotopes neutrophages (voir partie 1.2.4). Ces noyaux capturent le surplus de neutrons afin de faire diminuer le coefficient de multiplication.

Pour cela, une option est proposée par le code MURE, permettant de rajouter du bore dans certains caloporteurs. La proportion de ce dernier est alors ajustée au cours du temps afin de conserver la valeur du coefficient de multiplication souhaitée.

Nous avons également développé une méthode de gestion de la réactivité par insertion de barres de commandes. Cette option n'est pas encore disponible dans la version officielle du programme, car même si cette méthode fonctionne, un travail d'optimisation d'écriture est nécessaire.

Ne connaissant pas à l'avance la position des barres de contrôle permettant d'obtenir un k_{eff}

proche de celui souhaité, le code MURE l'estime en effectuant des calculs supplémentaires. Le principe de gestion de la réactivité est représenté par le schéma 3.2.

Pour simplifier les calculs, les barres de contrôle sont considérées comme solidaires dans l'ensemble du cœur. Autrement dit, elle suivent toutes les mêmes changements de positions.



Figure 3.2: Schéma de principe d'une simulation MURE avec gestion des barres de contrôle

Les étapes supplémentaires sont réalisées par le programme MURE, une fois l'équation de Bateman résolue pour le i^{ime} pas d'évolution et le combustible du temps $i + 1$ obtenu. Trois nouveaux fichiers MCNPX sont créés pour des positions de barres de contrôle différentes : insérées d'un quart, complètement introduites et sorties. Les calculs de transport correspondant sont alors effectués et les valeurs de réactivité associées extraites.

Ces résultats permettent, ensuite, de déterminer les constantes de la fonction 3.14 estimant la réactivité suivant la longueur d'insertion des barres de contrôle. Dans cette expression, H est la hauteur du cœur et z la longueur d'enfoncement des barres. Les paramètres a et b sont déduits de la réactivité ρ du système pour des positions particulières correspondant aux calculs supplémentaires réalisés avec le programme MCNPX (voir 3.15 et 3.16). Le k_{eff} est directement lié à la réactivité par l'équation 1.2. L'estimation de la position des barres de contrôle dans le cœur est donc la longueur d'insertion z correspondant au ρ souhaité.

$$\rho(z) = \rho(0) + a \cdot z - b \cdot \sin \frac{2\pi \cdot z}{H} \quad (3.14)$$

$$a = \frac{\rho(H) - \rho(0)}{H} \quad (3.15)$$

$$b = \rho(0) + \frac{aH}{4} - \rho\left(\frac{H}{4}\right) \quad (3.16)$$

La figure 3.3 illustre, pour un exemple d'ADS MUST à caloporteur sodium donné, la variation de réactivité en fonction de la longueur d'insertion des barres de contrôle. Les carrés noirs sont les trois valeurs calculées lors d'une évolution avec gestion du k_{eff} . La courbe correspond à la fonction 3.14 résolue à partir de ces points. Et enfin les cercles sont des résultats supplémentaires obtenus avec le code MCNPX afin de comparer la courbe théorique à des valeurs issues de simulations. Nous observons un bon accord entre les deux.

La précision de cette méthode dépend du temps de calcul. Cette remarque prend d'autant

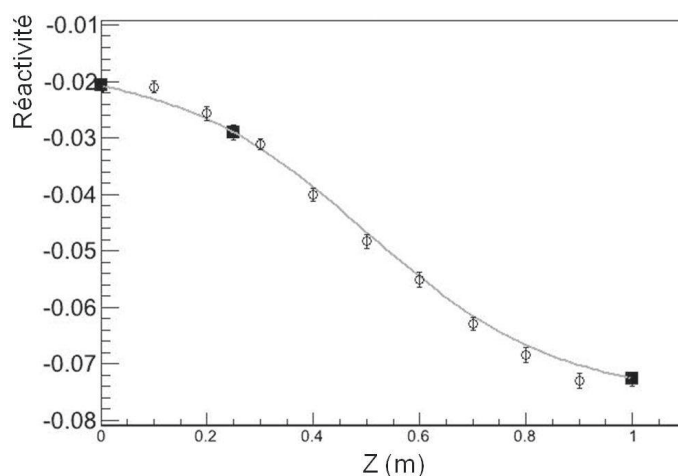


Figure 3.3: Réactivité, d'un cœur d'ADS MUST à caloporteur sodium, en fonction de la position des barres de contrôle. Les carrés sont les points déterminés dans le cadre d'une simulation d'évolution effectuée avec le programme MURE. Les cercles correspondent à des calculs supplémentaires réalisés avec le code MCNPX, permettant d'illustrer cette partie, et la courbe est à la fonction calculée avec la fonction 3.14.

plus de sens que cette méthode de gestion de la réactivité du cœur rajoute trois calculs MCNPX par pas en temps, et par conséquent, elle augmente nettement la durée de la simulation.

Pour les simulations présentées dans cette thèse, cette méthode est satisfaisante. Mais, il est peut être possible de l'optimiser afin de la rendre plus rapide.

3.2.5 Calcul couplé de neutronique et de thermo-hydraulique

L'un des facteurs limitant la puissance d'un réacteur est sa capacité à extraire la chaleur produite par les fissions nucléaires. Les composants du cœur et notamment les crayons de combustible se détériorent si leur température caractéristique de fonctionnement est dépassée.

Un module dédié aux études thermo-hydrauliques est disponible dans le programme MURE [55] [56]. Il couple des calculs de neutronique effectués avec le code MCNPX et de thermo-hydraulique réalisé avec la classe BATH (Basic Approach of Thermal Hydraulics) de MURE afin de déterminer les distributions de température du système. Il est également possible d'associer le code MURE avec le programme COBRA (Coolant Boiling in Rod Arrays) [57].

Pour les travaux de recherche présentés dans ce manuscrit, seule la classe BATH a été utilisée afin d'estimer la température du combustible en fonction de la puissance libérée par le crayon.

La classe BATH

Cette classe gère l'évaluation de la température des matériaux (caloporteur, combustible...) à l'aide d'un couplage de calculs de neutronique et de thermo-hydraulique, à deux dimensions (axiale et radiale). Les résultats obtenus avec la classe BATH ne sont pas aussi précis que ceux des calculs réalisés avec le code COBRA qui peut être explicitement couplé au programme MURE par l'utilisateur. Mais, cette classe a l'avantage de pouvoir utiliser des géométries déjà définies. De plus, l'utilisateur contrôle complètement la simulation. Enfin, ce module permet de simuler un grand nombre de caloporteurs, de gaines et de combustibles en ajoutant si besoin les bases de données et les équations nécessaires.

Lors de la simulation, le programme résout l'équation 3.17 de transfert de masse et de chaleur.

$$\dot{m}C_p\Delta T = q_p A \quad (3.17)$$

Dans cette relation, C_p est la capacité calorifique du caloporteur, \dot{m} le débit massique du caloporteur et ΔT est la variation de température du caloporteur entre deux positions axiales. A est l'aire d'échange et q_p est la masse volumique de flux de chaleur en paroi.

Les échanges de chaleur induits par le phénomène de convection sont calculés à partir de l'expression 3.18, dans le cas d'un écoulement turbulent du caloporteur.

$$T_{pin} - \bar{T}_{calo} = \frac{q_p}{h} \quad (3.18)$$

T_{pin} est la température de la gaine du crayon de combustible et du caloporteur. \bar{T}_{calo} est la température moyenne du caloporteur et h le coefficient d'échange thermique en $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$. Ce coefficient prend en compte les effets du type de convection et du caloporteur utilisé.

Les échanges de chaleur résultant du phénomène de conduction dans la gaine et dans le combustible sont calculés en appliquant la loi de Fourier [58]. Les échanges radiatifs entre leurs surfaces ne sont pas pris en compte à cause du manque de précision sur la composition des gaz produits dans le crayon de combustible.

L'énergie dissipée lors de l'écoulement du fluide caloporteur est appelée perte de charge. Celles liées à la gravité et aux frictions sont calculées à l'aide de modèles. Celles dues à des particularités du système, comme des grilles traversées par le fluide, sont déterminées avec des valeurs empiriques. La vitesse d'écoulement du fluide est supposée constante, donc les pertes de charge résultantes de l'accélération du fluide sont considérées nulles.

Pour réaliser les différents calculs, la classe BATH utilise des bases de données contenant

les caractéristiques des matériaux en fonction de la température. Pour un combustible, elles contiennent sa densité et sa conductivité thermique, et pour un caloporteur elles contiennent également la viscosité et la capacité calorifique.

Utilisation de la classe de thermo-hydraulique BATH

La méthode suivie pour effectuer une simulation avec le module de thermo-hydraulique est relativement simple. La première étape est identique aux autres calculs effectués avec le programme MURE. Il est nécessaire de décrire la géométrie du système en détaillant l'assemblage et les crayons de combustible. Un découpage axial doit être réalisé pour définir les cellules ou groupement de cellules dans lesquels sont réalisés les calculs.

De plus, afin de faire les calculs de thermo-hydraulique, quelques paramètres de fonctionnement sont indispensables : le type de combustible et de caloporteur, la température d'entrée de ce dernier, son débit massique...

Ensuite, une simulation de neutronique est réalisée avec le programme MCNPX, afin d'extraire le profil du flux au sein du système. Puis le code MURE en déduit les taux de réactions et la distribution de puissance en deux dimensions. Une puissance est alors associée à chaque cellule ou groupement de cellules et les calculs des équivalences en puissance linéique sont réalisés.

La classe BATH extrait une nouvelle distribution de température à partir de la carte de dépôt de puissance. Les calculs de thermo-hydraulique, comme la densité ou les températures d'équilibre, sont effectués et les données obtenues sont réutilisées dans une nouvelle simulation de transport.

Toutes les étapes sont ainsi réalisées plusieurs fois afin de faire converger le système vers un équilibre. À chaque itération, les caractéristiques (températures, agitations, densités...) des différents matériaux et cellules sont affinées pour atteindre des valeurs relativement constantes d'un calcul à l'autre.

Ajout de bases de données

La classe BATH a été développée dans un premier temps pour des réacteurs à eau légère et lourde ainsi qu'au sodium, utilisant des combustibles de type UOx et MOx.

Mais dans le cadre de cette thèse, nous avons également étudié des réacteurs à caloporteur plomb et surtout des combustibles composés d'un mélange de MgO et d'actinides mineurs sous forme oxyde.

Une base de donnée a donc été écrite pour chacun de ces matériaux. Elles contiennent la densité, la capacité calorifique, la conductivité thermique et la viscosité pour un caloporteur plomb. Pour des combustibles de type NpO₂, AmO₂ et CmO₂, seules les densités sont disponibles. Pour une matrice inerte de MgO la conductivité thermique et la densité sont accessibles.

3.3 ACDC

MURE est un programme précis pour calculer l'évolution du combustible irradié. Cependant, les simulations Monte-Carlo sont chronophages. Or pour estimer la composition d'un combustible pour un scénario à l'équilibre, il est nécessaire de simuler de nombreux cycles. À chaque cycle, les quantités de noyaux dont nous cherchons l'équilibre sont modifiées jusqu'à l'obtention de proportions identiques en début et fin de cycle. Réaliser cela avec le programme MURE peut être très long.

Nous avons donc développé en C++, un code simple et rapide, dédié à cette tâche : ACDC (Actinide Code for Depletion Calculation). Il permet d'évaluer approximativement en quelques secondes le vecteur isotopique de noyaux lourds à l'équilibre là où MURE en demanderait plusieurs semaines.

3.3.1 Principe de fonctionnement

Le principe de simulation avec le programme ACDC est schématisé par la figure 3.4. La première étape est d'adapter les paramètres du fichier d'entrée au système et au scénario étudiés. Ce fichier est lu par le code et les caractéristiques de la simulation en sont extraites.

Ensuite une première évolution d'irradiation est effectuée en résolvant l'équation de Bateman 3.9 avec une méthode Runge-Kutta d'ordre deux. Ces calculs sont faits à flux et sections efficaces constantes. Une fois l'irradiation terminée, une première évolution par décroissance est effectuée durant la phase de refroidissement.

Puis, on suppose les séparations isotopiques instantanées et opérées dès le début de la période de fabrication. Les produits de fissions et les noyaux destinés aux déchets sont supprimés. Ils sont remplacés par les noyaux importés de l'extérieur avec leurs proportions isotopiques définies dans le fichier d'entrée. Ainsi les noyaux destinés à être recyclés restent dans le combustible. Une fois cette nouvelle composition obtenue, un nouveau calcul d'évolution de décroissance radioactive est effectué durant la période de fabrication. Une fois cette phase terminée, la composition obtenue est réutilisée pour un nouveau cycle.

On simule ainsi plusieurs dizaines de cycles jusqu'au temps final défini dans le fichier d'entrée. Lorsque l'équilibre est atteint, le combustible de début de cycle reste toujours le même. À la fin de la simulation, le vecteur isotopique à l'équilibre est extrait.

Il est alors conseillé de vérifier le résultat avec un autre code, comme MURE par exemple, surtout si la composition du combustible change beaucoup lors de la mise à l'équilibre. Dans une telle situation, il est possible que le flux neutronique et les sections efficaces utilisés soient éloignés des valeurs qui correspondent à la composition finale. Alors cette dernière peut ne pas être à l'équilibre. Si c'est le cas, une simulation réalisée avec le code MURE permet d'extraire les sections efficaces et le flux neutronique obtenus avec le nouveau combustible, puis de les utiliser pour un nouveau calcul effectué avec le programme ACDC et ainsi d'affiner les paramètres du fichier d'entrées afin de gagner en précision sur la composition à l'équilibre du combustible.

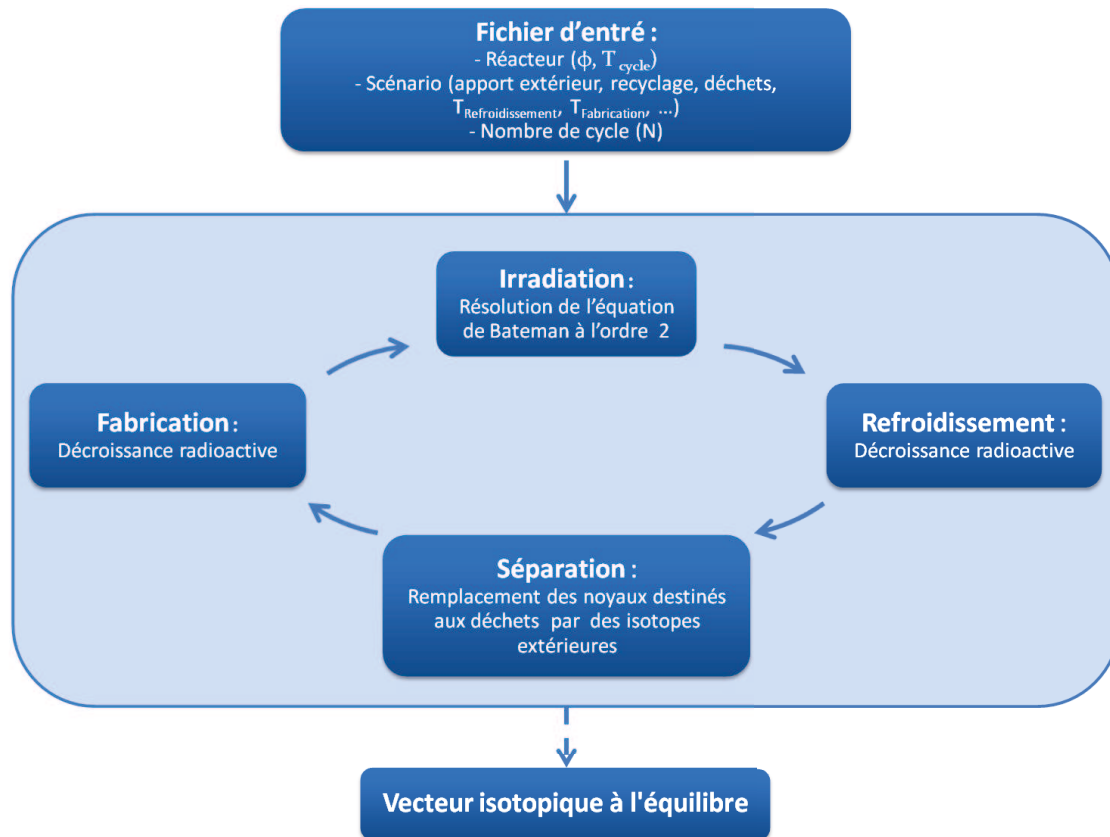


Figure 3.4: Schéma de principe d'une simulation ACDC

3.3.2 Fichier d'entrée

Ce programme s'appuie sur l'utilisation d'un fichier contenant toutes les informations nécessaires à l'estimation du vecteur isotopique d'un scénario à l'équilibre. Pour cela, il faut définir le scénario étudié ainsi que les caractéristiques du réacteur et des principaux noyaux lourds afin de résoudre l'équation de Bateman 3.9.

Paramètres du réacteur

Il y a seulement deux paramètres à définir pour le réacteur. Le premier est son flux neutronique exprimé en $cm^{-2} \cdot s^{-1}$. Cette valeur est utilisée pour résoudre l'équation d'évolution du combustible. La deuxième caractéristique est la durée d'irradiation du cœur.

Paramètres temporels

Le temps final de la simulation doit être défini. Il correspond à un certain nombre de cycles successifs. Ce paramètre est fixé de manière à obtenir l'équilibre de la composition du combustible. Il est généralement de quelques dizaines de cycles.

Les temps de refroidissement et de fabrication sont également définis. Ils ont une influence

sur les proportions des isotopes ayant des périodes courtes et de leurs descendants. En effet les isotopes dont la période radioactive est du même ordre de grandeur que le refroidissement vont nettement diminuer et alimenter d'autres noyaux. Par exemple le ^{241}Pu a une période de 14.35 ans et décroît vers le ^{241}Am . Donc, lors d'un refroidissement de 5 ans ou plus, les variations de ces isotopes peuvent être non négligeables.

Définition du scénario

Il faut définir les isotopes importés pour la production du combustible neuf, les noyaux recyclés dans le réacteur étudié et ceux considérés comme des déchets. Le vecteur d'entrée dans le cycle d'un cœur, fixe les proportions isotopiques disponibles pour alimenter le combustible. Cet apport extérieur correspond, par exemple, dans le cadre des scénarios double strate, aux actinides mineurs produits par la strate électrogène et destinés à être transmutés. Mais, il peut être utile à chaque fois qu'un apport de matière (uranium, plutonium...), avec des proportions isotopiques constantes, est envisagé.

Les isotopes recyclés sont ceux dont l'utilisateur cherche un équilibre. Par exemple, dans des scénarios avec multi-recyclage du plutonium, cet élément va être réutilisé afin de limiter sa production. Lorsqu'il atteint l'équilibre la quantité issue du recyclage en début de cycle est identique à celle de fin de cycle (refroidissement et fabrication compris). Au contraire, les noyaux destinés aux déchets ultimes sortent à chaque fin de refroidissement. Il est également possible de fixer un pourcentage de perte lors du recyclage.

Caractéristiques des isotopes

Afin de calculer l'évolution du combustible, les caractéristiques des isotopes sont indispensables. Seuls les 21 noyaux lourds ayant une période supérieure à 162 jours, compris entre le ^{232}Th et le ^{237}Cm , sont pris en compte. Si une décroissance ou réaction crée un isotope lourd dont la demi-vie est inférieure, son descendant est directement produit. Cette limite sur les périodes a été choisie afin de limiter les temps de calculs, car le pas en temps utilisé pour la résolution de l'évolution est fixé par rapport à cette valeur. Plus cette valeur est petite plus les pas en temps doivent être petits et donc plus le calcul de mise à l'équilibre est long. Nous avons fait un compromis entre le temps de calcul et le nombre de noyaux pris en compte.

Les noyaux engendrés à l'extérieur de cette liste durant l'évolution alimentent une variable tampon appelée « TMP ». Il est important de s'assurer qu'elle reste négligeable lors d'une simulation, car sinon cela signifie que des noyaux créés dans des proportions significatives ne sont pas pris en compte.

Lors du calcul, les noyaux qui fissionnent créent des produits de fission. Ces derniers sont tous stockés dans une variable nommée « PF » qui est remise à zéro en début de cycle.

Pour chaque isotope ou assimilé, comme la variable PF, de nombreuses caractéristiques sont

nécessaires à l'évolution : la proportion molaire initiale, les sections efficaces microscopiques de fission, de capture et de réaction ($n,2n$), le nombre moyen de neutrons émis par fission et leur demi-vie.

Enfin, le nombre de parents de chacun et les réactions associées (décroissance, capture, fission, $n,2n$) sont précisés. Ces derniers paramètres ne sont pas sensés changer si la liste de noyaux n'évolue pas ou si la demi-vie minimale n'est pas changée.

3.3.3 Illustration du fonctionnement de ACDC

Pour illustrer le fonctionnement de ce code, nous allons étudier les résultats obtenus avec l'exemple suivant. Le réacteur a un cycle d'irradiation de 5 ans et son flux neutronique est de $10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Les durées de refroidissement et de fabrication du combustible sont respectivement de 5 et 2 ans.

La composition molaire de départ du combustible est constituée de 60.69 % d' ^{241}Am , de 0.69 % d' ^{242m}Am et de 38.62 % d' ^{243}Am . Un apport d'américium avec les mêmes proportions isotopiques que le combustible initial est effectué à chaque cycle. L'uranium, le plutonium et l'américium sont recyclés et les autres éléments sont destinés aux déchets. Les sections efficaces utilisées sont issues de ENDF-B7 [10] à 500 keV.

Les figures 3.5 et 3.6 représentent l'évolution des proportions molaires sur 40 cycles d'irradiation des noyaux les plus abondants. Les courbes du graphique 3.5 correspondent aux ^{241}Am et ^{243}Am . Nous observons clairement les rechargements en américium à chaque début de cycle.

Dans un premier temps, les proportions de ces isotopes en début de cycle diminuent. En effet, au commencement, le combustible est composé uniquement d'américium. Il est donc presque le seul élément à évoluer. L' ^{241}Am et l' ^{243}Am créent des produits de fissions, et également d'autres noyaux lourds lorsqu'ils subissent des captures. Ainsi à chaque rechargement, la quantité d'américium ayant fissionnée est remplacée par de l'américium. Mais la part ayant produit d'autres noyaux lourds n'est pas compensée, donc la proportion d'américium du cycle suivant est plus faible.

La quantité d'américium diminue alors jusqu'à ce que la proportion rechargée compense les pertes durant l'irradiation. C'est-à-dire une fois que d'autres noyaux sont présents en des quantités importantes et créent des produits de fission.

Nous observons ainsi une augmentation assez rapide des proportions de ^{238}Pu . Ce noyau est créé indirectement par capture neutronique d'un ^{241}Am qui produit du ^{242}Cm . Ce dernier décroît vers le ^{238}Pu avec une période de 162 jours.

La quantité de ^{240}Pu augmente également par capture neutronique de l' ^{243}Am . Cette réaction produit du ^{244}Cm qui décroît avec une période d'environ 18 ans vers le ^{240}Pu .

Le troisième isotope dont les proportions augmentent sensiblement, est le ^{234}U . Il est pro-

duit par décroissance de ^{238}Pu avec une demi-vie de 87.7 ans. La période étant relativement longue la quantité de ^{234}U croît lentement.

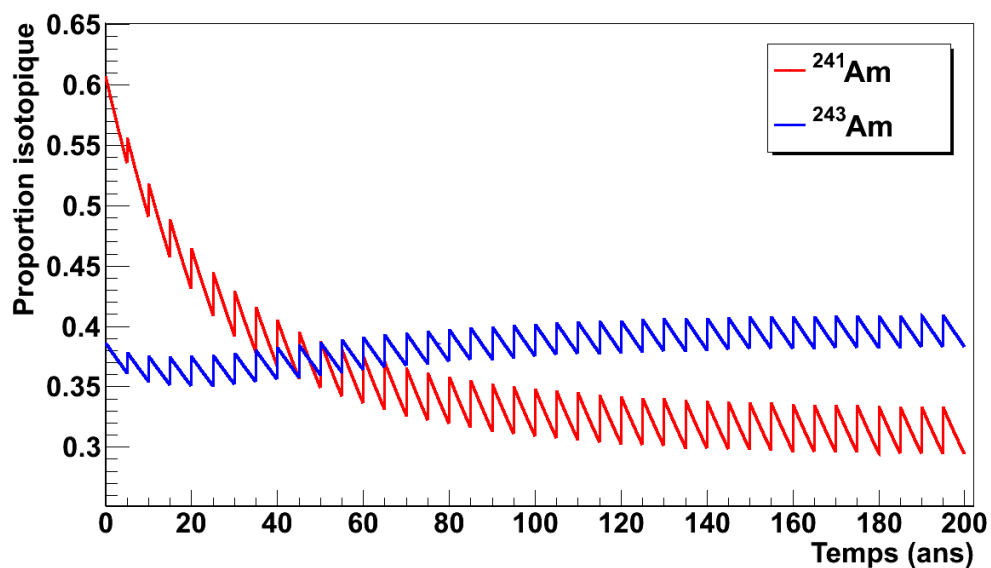


Figure 3.5: Évolution sur 40 cycles soit 200 ans d'irradiation, des proportions isotopiques de l' ^{241}Am (en rouge) et de l' ^{243}Am (en bleu) d'une simulation ACDC.

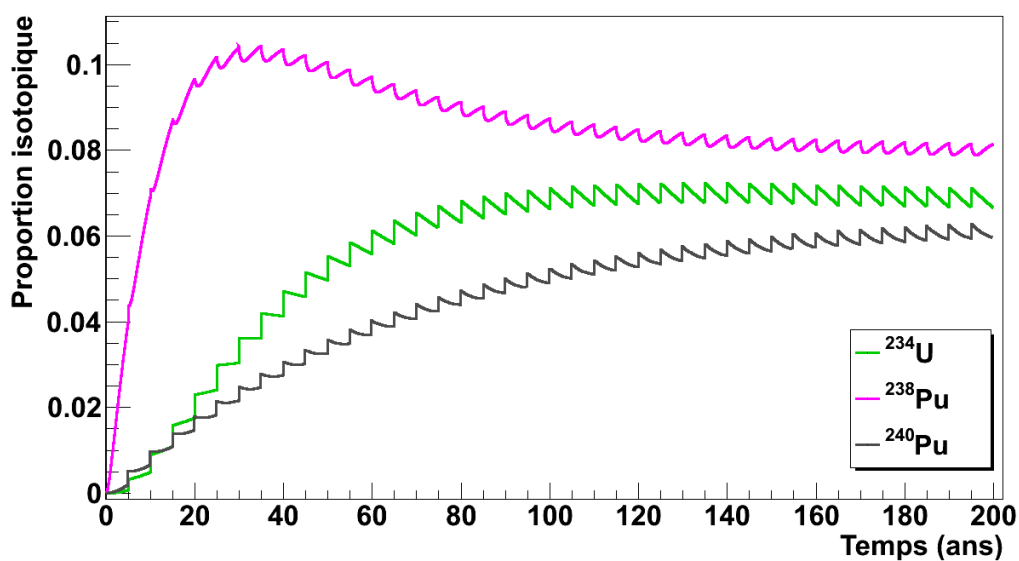


Figure 3.6: Évolution sur 40 cycles soit 200 ans d'irradiation, des proportions isotopiques de l' ^{234}U (en vert), du ^{238}Pu (en rose) et du ^{240}Pu (en noir) d'une simulation ACDC.

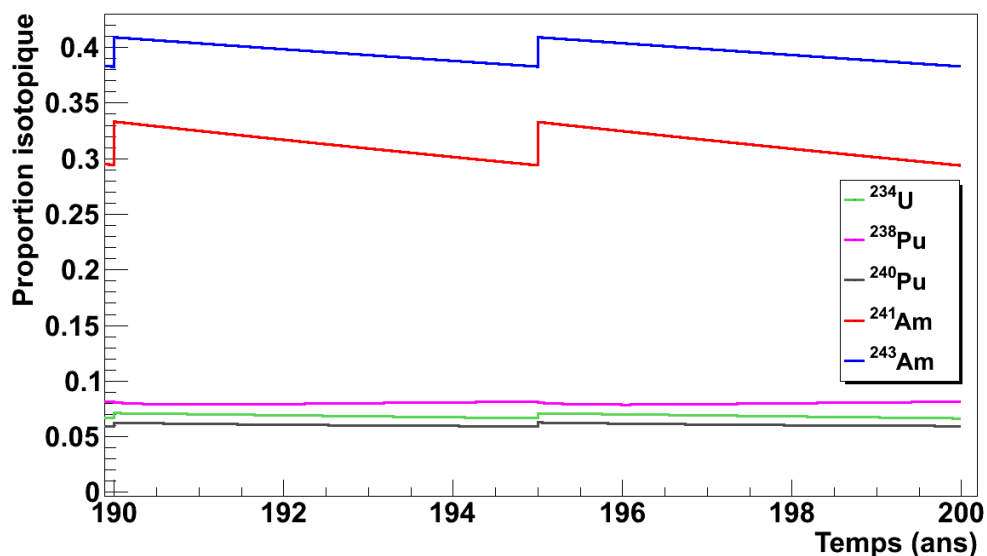


Figure 3.7: Évolution des proportions isotopiques, sur les 2 derniers cycles des 40 simulés soit 200 ans, de l' ^{234}U (en vert), du ^{238}Pu (en rose), du ^{240}Pu (en noir), de l' ^{241}Am (en rouge) et de l' ^{243}Am (en bleu).

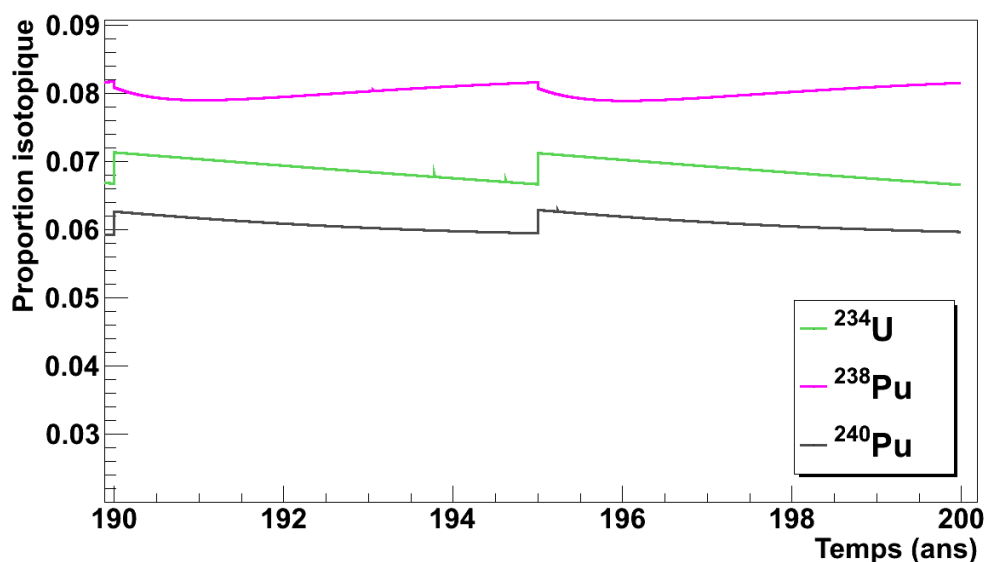


Figure 3.8: Évolution des proportions isotopiques, sur les 2 derniers cycles des 40 simulés soit 200 ans, de l' ^{234}U (en vert), du ^{238}Pu (en rose) et du ^{240}Pu (en noir).

À partir d'un certain temps, nous pouvons remarquer une stabilisation de la composition. Lorsque les proportions isotopiques, en début de cycle, sont toujours identiques, l'équilibre est atteint. Les figures 3.7 et 3.8 correspondent aux zoom sur les deux derniers cycles des résultats

de l'exemple étudié. Elles montrent clairement l'équilibre de la composition.

Nous observons sur les courbes du ^{240}Pu et de l' ^{234}U (figure 3.8), un écart entre la fin et le début de l'irradiation. Ce saut est lié aux décroissances ayant lieu lors du refroidissement et de la fabrication. Par exemple, le ^{240}Pu est alimenté par le ^{244}Cm dont la période radiative est de 18.1 années. Des noyaux de ^{244}Cm ont donc le temps de décroître vers le ^{240}Pu avant qu'ils soient mis aux déchets.

3.3.4 Comparaison MURE - ACDC

Pour estimer un ordre de grandeur de l'erreur faite avec ACDC, nous avons comparé des résultats obtenus avec ce code et avec le programme MURE sur une irradiation dans un cœur à spectre rapide. Un assemblage de type SFR est simulé avec une puissance constante de 7.947 MW ce qui correspond à un réacteur de 3.6 GW thermique. L'irradiation dure 5.6 ans soit un cycle d'irradiation complet à pleine puissance. Le tableau 3.1 donne les proportions molaires des noyaux lourds du combustible. Pour ces simulations, le flux ($2.41 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) et les sections efficaces microscopiques moyennées sur le flux neutronique en énergie (équation 3.12) utilisés par ACDC sont extraits de la simulation MURE au début du cycle.

Isotopes	Proportion molaire
^{238}U	0.8455
^{238}Pu	0.0055
^{239}Pu	0.0736
^{240}Pu	0.0462
^{241}Pu	0.0129
^{242}Pu	0.0163

Tableau 3.1: Proportions molaires des noyaux lourds du combustible en début de cycle, de l'assemblage SFR simulé pour comparer ACDC et MURE.

Comme le montrent les figures 3.9 et 3.10, les évolutions du même combustible avec les deux programmes donnent des résultats relativement proches. Les courbes en traits pleins ont été obtenues avec ACDC et les traits discontinus sont les résultats de MURE.

Le tableau 3.2 contient les proportions isotopiques en fin de cycle d'irradiation, de l' ^{238}U et du plutonium, données par les deux programmes. Ces valeurs sont normalisées par la somme totale de ces noyaux pour chacune des simulations. Nous pouvons ainsi estimer l'écart entre les résultats des deux programmes. Nous constatons une différence inférieure à 1.5 %. Donc sur un seul cycle d'irradiation, l'approximation du flux et des sections efficaces constantes donne des

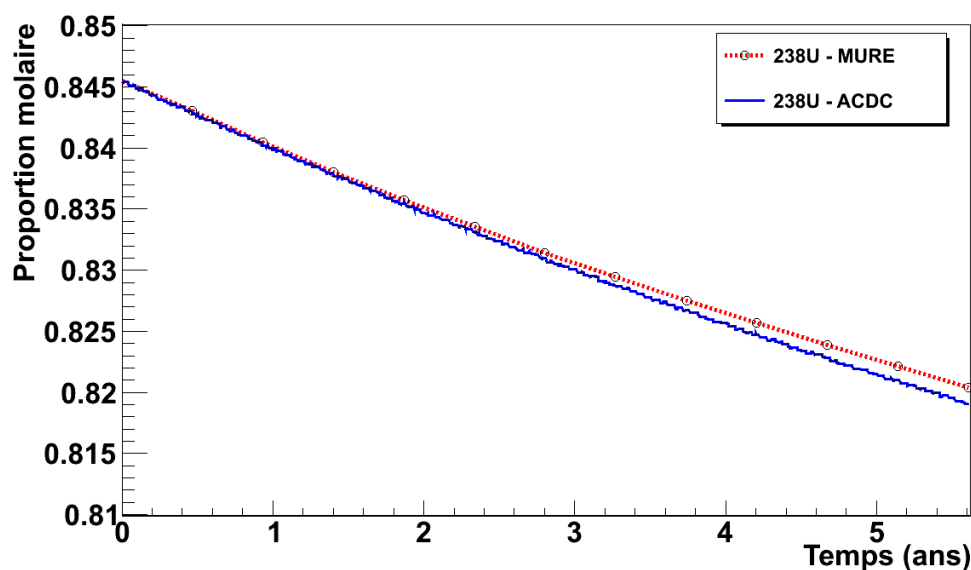


Figure 3.9: Comparaison des calculs d'évolution de l' ^{238}U durant un cycle d'irradiation, avec les codes MURE et ACDC. La ligne pleine est le résultat obtenu avec ACDC et la ligne discontinue avec des marqueurs est le résultat de la simulation de MURE.

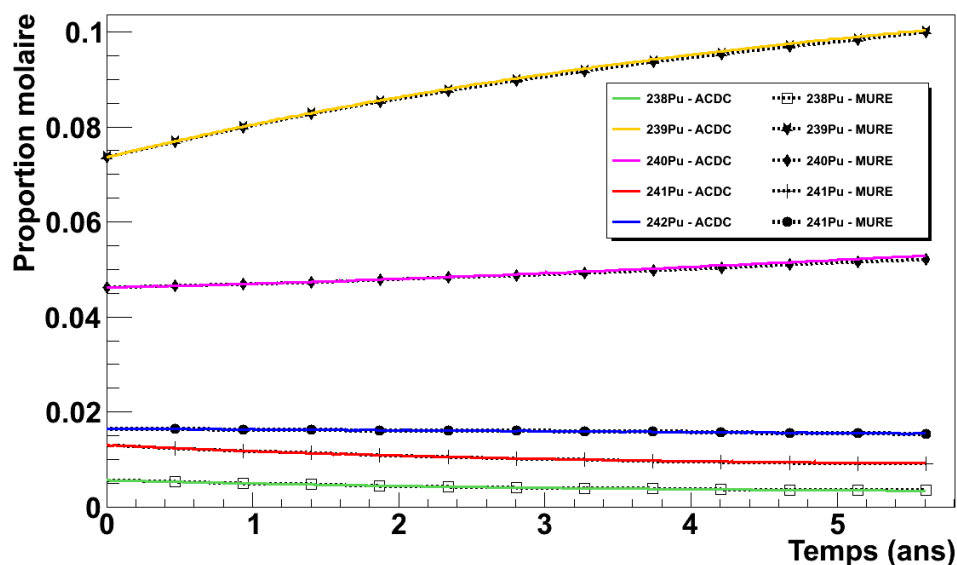


Figure 3.10: Comparaison des calculs d'évolution des isotopes de plutonium durant un cycle d'irradiation, avec les codes MURE et ACDC. Les lignes pleines sont les résultats obtenus avec ACDC et les lignes discontinues avec des marqueurs sont les simulations de MURE.

résultats assez proches.

Il est intéressant d'estimer l'impact sur l'évolution du combustible, du changement des sec-

Isotopes	Proportions molaires %		Écarts (%)
	ACDC	MURE	
^{238}U	81.899	82.037	0.17
^{238}Pu	0.332	0.337	1.26
^{239}Pu	10.036	9.985	0.51
^{240}Pu	5.292	5.216	1.46
^{241}Pu	0.907	0.895	1.40
^{242}Pu	1.533	1.531	0.15

Tableau 3.2: Proportions molaires finales de l' ^{238}U et de plutonium du combustible de l'assemblage SFR simulé avec ACDC et MURE. Les résultats sont normalisés par la somme des quantités des isotopes considérés.

Isotopes	Écarts (%)	
	Sections efficaces	Flux neutronique
^{238}U	0.15	0.09
^{238}Pu	1.21	1.34
^{239}Pu	0.01	0.43
^{240}Pu	2.06	0.53
^{241}Pu	2.14	0.07
^{242}Pu	0.12	0.32

Tableau 3.3: Écarts absolus sur les proportions molaires finales de l' ^{238}U et de plutonium simulés avec ACDC en faisant varier les sections efficaces ou le flux. Seul le paramètre étudié est modifié pour faire ces comparaisons. Les sections efficaces sont extraites de la simulation MURE en début et en fin de cycle, de même que le flux. Les résultats sont normalisés par la somme des quantités des isotopes considérés.

tions efficaces et du flux avec ACDC. Pour cela, deux nouveaux calculs sont effectués avec ce code.

Le premier est effectué avec le même fichier d'entrée que précédemment. Mais cette fois-ci, les sections efficaces sont extraites à la fin de la simulation réalisée avec le programme MURE. Le tableau 3.3 récapitule l'écart entre ces nouveaux résultats donnés par ACDC et ceux obtenus avec des sections efficaces initiales. Nous remarquons que les écarts sont inférieurs à 2.2 %.

Le deuxième calcul est effectué à partir des données initiales mais cette fois-ci avec le flux neutronique final ($2.33 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) extrait de la simulation effectuée avec le code MURE. Le tableau 3.3 contient les écarts obtenus avec la simulation de référence. L'influence du flux

est de 1.4 % pour le ^{238}Pu l'isotope dont la proportion est la plus faible, et inférieure à 0.53 % pour les autres.

Ces résultats sont cependant à relativiser car ils sont obtenus sur un unique cycle, à partir des sections efficaces et du flux neutronique extraits de la simulation MURE effectuée avec le même combustible. Mais lorsque le code ACDC calcule plusieurs cycles afin de trouver le vecteur isotopique à l'équilibre, le combustible change à chaque itération. Donc, avec la répétition des cycles, l'approximation du flux et des sections efficaces constantes limite la précision des résultats.

3.4 Code de simulation de scénario CLASS

3.4.1 Code de simulation de scénario

Les nombreux paramètres ayant un fort impact sur l'évolution d'un parc nucléaire, nécessitent l'utilisation d'outils complexes pour la simulation de scénarios. Ces programmes permettent, par exemple, d'estimer l'influence du déploiement de différents types de réacteurs ou encore de la mise en place de stratégies de valorisation des déchets. Ils calculent l'évolution des ressources, des inventaires valorisables, des déchets... Ou encore, des renseignements sur le parc complet peuvent être obtenus comme les besoins pour le traitement et la fabrication du combustible.

Les résultats donnés par ces programmes permettent d'estimer la faisabilité et les conséquences de la mise en place d'une stratégie. Ils sont également un moyen de comparer différents plans d'évolution d'un parc électronucléaire.

L'utilisateur de programme de simulation de scénarios choisit le type de réacteur (REP, SFR...) avec différentes caractéristiques comme sa date de démarrage ou le combustible utilisé. Les installations associées sont aussi définies, notamment les usines de traitement, les sites de stockage... Différentes contraintes peuvent être appliquées comme la capacité de retraitement des usines ou le temps de refroidissement minimal du combustible utilisé. Et à partir de l'ensemble de ces données d'entrée, le programme détermine l'évolution du parc et les échanges de matières entre ses différentes composantes.

En France, plusieurs programmes de simulation de scénarios existent. EDF a développé depuis une trentaine d'années le code TIRELIRE-STRATÉGIE [59]. Pour déterminer l'évolution des combustibles en cœur, il s'appuie sur des modèles d'équivalences de réactivité et d'évolution ainsi que sur l'utilisation de différents codes adaptés à l'étude spécifique de certains types de réacteurs et de combustibles.

Le code COSI (COde de SIMulation), développé en langage Java par le CEA [60], est le plus utilisé.

Les calculs d'évolution des matériaux lors de l'irradiation en cœur sont effectués avec le programme CESAR [61]. Ce dernier utilise des bibliothèques de sections efficaces à un groupe d'énergie et résout l'équation d'évolution du combustible à l'aide de la méthode Runge-Kutta. L'évolution lors des périodes de décroissance (refroidissement, stockage...) est résolue avec des calculs d'inversion de matrice.

Lors des rechargements, des modèles d'équivalence de réactivité sont appliqués afin d'obtenir un combustible permettant au cœur d'être critique. Les équations utilisées prennent en compte l'effet de chaque isotope d'uranium, de plutonium et d'actinides mineurs sur la criticité du cœur et le compare à celui du ^{239}Pu .

Ce programme est couramment utilisé pour les études de scénarios, mais il présente deux inconvénients pour l'usage souhaité dans le cadre de nos études. Le premier est que l'utilisateur n'a pas accès à ses sources. Il n'est donc pas possible d'apporter de légères modifications si le scénario étudié demande de nouvelles spécificités non prises en compte par le code.

Le deuxième point est l'utilisation de bases cryptées rendant compliqué l'ajout de nouveaux types de réacteurs. Dans le cadre de nos études, de nombreux ADS ayant chacun une composition différente ont été simulés. La gestion des bases de données de réacteur dans COSI semble en conséquence peu adaptée à notre usage.

Ces points ont poussés l'IN2P3 à développer un code ouvert permettant de simuler des scénarios alternatifs basés sur des réacteurs innovants. Ce programme s'appelle CLASS (Core Library for Advanced Scenario Simulation) [62] et est en cours de développement à SUBATECH avec la participation de l'IPN (Institut de Physique Nucléaire) d'Orsay.

Il a pour but d'être un code ouvert et facilement utilisable pour tous types de scénarios. Son premier axe de développement est la simulation de l'évolution des inventaires de parcs électro-nucléaires complexes à l'équilibre et en transition. À moyen terme l'objectif est d'intégrer des notions indispensables à l'évaluation complète d'un scénario, comme les risques industriels, la non prolifération ou les impacts économiques et sociologiques.

3.4.2 Principe de fonctionnement

Les sources de ce code constituent une librairie C++ accessible à l'utilisateur. Ce dernier a ainsi accès à l'ensemble de la structure du programme et donc au cheminement de celui-ci lors des calculs.

Pour réaliser une simulation, l'utilisateur écrit un fichier d'entrées en C++ décrivant l'en-

semble du scénario. Il doit détailler le parc initial composé de réacteurs dont il faut spécifier le type, la date de démarrage, le temps d'exploitation... D'autres détails peuvent être définis comme, par exemple, les stocks existants. Ensuite, il faut décrire l'évolution du parc suivant les stratégies de gestion du combustible et de déploiement de réacteur.

Puis, le programme réalise le calcul d'évolution et écrit les résultats dans des fichiers de sortie exploitables par l'utilisateur.

Le schéma 3.11 illustre le principe de fonctionnement de CLASS.

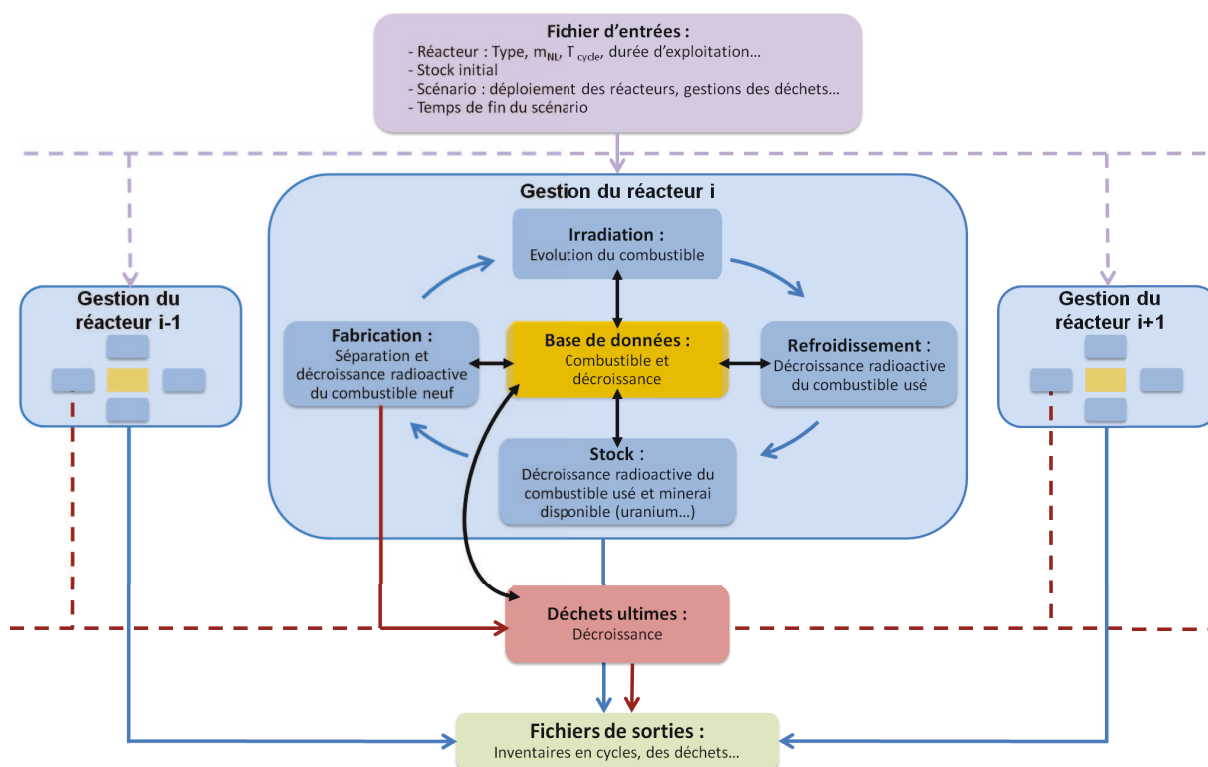


Figure 3.11: Schéma du principe de fonctionnement de CLASS.

Les calculs d'évolution de matériaux dans des réacteurs nucléaires prennent beaucoup de temps avec des programmes basés sur le calcul Monte Carlo. Afin de s'affranchir de ce problème, le programme CLASS s'appuie sur la lecture de bases de données.

Les calculs de l'évolution d'un grand nombre de réacteurs sont ainsi réalisés en amont avec, par exemple, le code MURE. L'évolution de l'inventaire des cœurs est alors formatée en bases de données ASCII. Pour ajouter un nouvel ensemble de bases de données, par exemple une filière Th/U dans un réacteur spécifique, il faut calculer l'évolution du cœur pour un nombre suffisant de compositions initiales validées et écrire les bases de données associées. Elles sont alors directement utilisables par CLASS.

Le même principe de lecture de bases de données est suivi pour la décroissance naturelle

des noyaux. Ainsi, le programme CLASS n'effectue pas de calcul d'évolution de combustible sous irradiation et de décroissance, mais de la lecture de bases de données.

3.4.3 Structure du programme

Le code CLASS est composé de nombreuses classes dont nous allons présenter les principales.

Classe CLASS

C'est la classe maitresse du code. Elle réalise l'interconnection entre les éléments du code et gère l'évolution du parc. Elle définit un vecteur contenant les instants clés de l'évolution. Ils correspondent à des fins d'irradiation ou d'exploitation d'un réacteur, des démarrages de réacteurs ou des fins de refroidissement. À chaque pas en temps contenu dans ce vecteur, elle fait évoluer l'ensemble des éléments en parallèle de manière synchrone. Enfin, elle génère les fichiers de sortie décrivant, par exemple, l'évolution des inventaires durant le scénario, les déchets produits...

Classe EvolutiveProduct

Cette classe contient l'évolution d'un isotope ou du combustible d'un réacteur sur une période fixée par la base de données. La base de données de la décroissance d'un isotope contient l'évolution de celui-ci sur une certaine durée mais également celles des isotopes produits directement ou non. Pour un réacteur, la base de données contient l'ensemble de l'évolution du combustible.

Le schéma 3.12 illustre la construction de ces bases. Le vecteur des composantes t_1 à t_f correspond aux pas en temps de la base de données couvrant une durée t_f .

ZAI définit un isotope avec Z son numéro atomique, A son nombre de masse et I son état d'excitation. Le vecteur contenant les ZAI correspond : soit aux noyaux présents en début de cycle d'un réacteur ou étant créés dans le combustible au cours de l'irradiation, soit l'ensemble des noyaux produits par décroissance radioactive d'un noyau considéré sur la durée couverte par la base de donnée.

Enfin, la matrice des composantes q_{mj} représente la base de donnée. Elle fait correspondre une quantité q_{mj} de l'isotope ZAI_m au temps t_j .

Classe Database

Elle met en relation un noyau ou un réacteur avec l'« EvolutiveProduct », c'est-à-dire la base de donnée correspondante. Elle contient, par exemple, l'ensemble des bases de décroissances

$$\begin{pmatrix} ZAI_1 \\ \vdots \\ ZAI_i \\ \vdots \\ ZAI_m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} t_1 & \dots & t_j & \dots & t_f \\ q_{1,1} & \dots & q_{1,j} & \dots & q_{1,f} \\ \vdots & & \vdots & & \vdots \\ q_{i,1} & \dots & q_{i,j} & \dots & q_{i,f} \\ \vdots & & \vdots & & \vdots \\ q_{m,1} & \dots & q_{m,j} & \dots & q_{m,f} \end{pmatrix}$$

Figure 3.12: Schéma d'utilisation des bases de données.

radioactives.

Classe Réacteur

Cette classe permet de décrire un réacteur qui est défini par une durée d'exploitation et de cycle d'irradiation. Un réacteur contient une certaine masse de noyaux lourds et est rattaché à une base de données.

Classe TraitementFactory

La classe TraitementFactory permet de réaliser les décroissances radioactives des isotopes n'étant pas en cours d'irradiation. Ainsi, elle traite le combustible utilisé en cours de refroidissement, ceux entreposés en attendant d'être recyclés et les déchets ultimes. Elle gère la décroissance radioactive de chaque combustible séparément.

Classe Storage

Cette classe contient les stocks de combustibles usés ou de matériaux disponibles dans lesquels il est possible d'extraire des éléments. On peut ainsi, par exemple, prévoir une quantité d'uranium disponible. Les différents stocks sont gérés de manière indépendante. Les déchets ultimes sont des stocks desquels il est impossible de retirer des éléments. La décroissance radioactive des isotopes est effectuée.

Classe FabricationPlant

Elle gère la fabrication du combustible avec ou sans recyclage de certains éléments. Pour cela, elle puise des éléments dans un stock suivant les priorités demandées par l'utilisateur, comme utiliser les plus anciens ou les plus récents. L'objectif est d'obtenir un combustible utilisable par le réacteur. La fabrication s'appuie donc sur l'utilisation des bases de données présentées dans la partie suivante.

3.5 Calcul d'évolution d'un ADS

3.5.1 Problématique de la source externe

Comme nous l'avons vu dans la partie 3.1.2 présentant le programme MCNPX, il y a plusieurs moyens de définir une source de neutrons suivant la nature du problème étudié. Si nous cherchons à simuler l'irradiation d'un milieu par une source connue, l'utilisation d'une source fixe de particule est adaptée. Par contre, si le milieu est multiplicateur, c'est-à-dire contenant des noyaux fissiles qui vont générer des neutrons, alors une source critique peut s'avérer indispensable suivant le coefficient de multiplication du système.

Nous devons effectuer avec MURE des calculs d'évolution mettant en jeu des réacteurs sous-critiques, contenant donc un combustible composé de noyaux fissiles. Par conséquent, une source critique semble être adaptée au problème. Cependant, son utilisation induit des problèmes physiques. En effet, il n'est pas possible alors de prendre en compte la source externe de neutron par une telle méthode de calcul. Par conséquent, la distribution spatiale des neutrons dans le cœur sous-critique ne sera pas réaliste. Et la distribution en énergie des neutrons n'aura pas de composante à haute-énergie représentative de la réaction de spallation.

Simuler un ADS avec une source fixe a l'avantage de prendre en compte la source de neutron et d'induire un flux dans l'ADS représentatif de la réalité. Cependant, l'utilisation de cette méthode de calcul pose plusieurs problèmes.

Premièrement, le coefficient de multiplicité n'est pas directement connu. Il existe des moyens pour l'estimer à partir d'options spécifiques. Mais si le k_{eff} est supérieur ou égal à 1, la simulation avec une source fixe conduit à une saturation de la mémoire allouée au code car le nombre de particules à simuler pour une particule source est divergeant.

Deuxièmement, la gestion de cette méthode de calcul n'est pas implémentée pour l'instant dans le code MURE. Cela nécessiterait un développement du programme ainsi qu'un important travail de validation de la méthode.

Il semble donc plus simple dans un premier temps de simuler un ADS à partir d'une source critique. Mais il convient alors d'estimer le biais induit par cette méthode, relativement à la méthode basée sur l'utilisation d'une source fixe. Pour cela, nous allons effectuer une série de calculs basiques à partir d'une sphère fissile homogène dont le rayon est choisi du même ordre de grandeur que le rayon d'un ADS.

3.5.2 Simulation d'une sphère homogène

Nous simulons deux sphères imbriquées comme le montre la figure 3.13. La sphère externe de 57 cm de rayon est composée d'un combustible homogène d' UO_2 et de H_2O dont la composition molaire est donnée dans le tableau 3.4. À l'intérieur de celle-ci, une sphère de 15 cm de rayon est ajoutée. Elle est composée de plomb dont la composition isotopique est divisée en parts égales de ^{207}Pb et ^{208}Pb . Les densités des matériaux sont de $4 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ pour la sphère externe et de $11.3 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ pour la sphère interne.

Afin d'extraire les valeurs locales du flux neutronique, une discrétisation sphérique est réalisée par pas de 1 centimètre de rayon entre 0 et 60 centimètres. Lors des calculs effectués par le code MCNPX, nous obtiendrons ainsi le flux neutronique dans chaque portion de sphère.

De plus, les valeurs du flux neutronique en fonction de l'énergie sont extraites dans la sphère externe. Elles sont obtenues avec un découpage logarithmique de 200 pas en énergie compris entre 1 meV et 1 GeV.

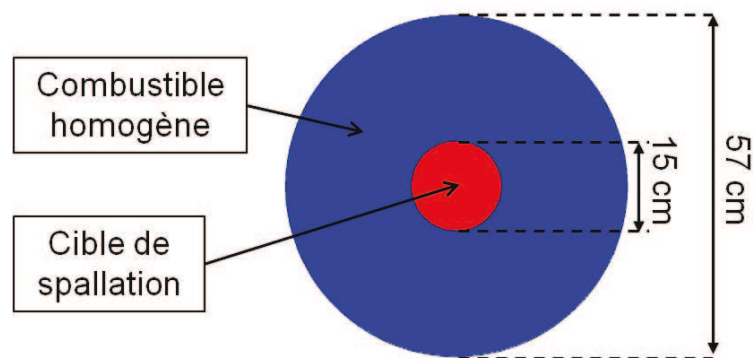


Figure 3.13: Schéma de la géométrie simulée avec le programme MCNPX. La sphère extérieure en bleu est composée d'un mélange d' UO_2 et de H_2O . La sphère interne en rouge contient du plomb.

Isotopes	Composition molaire
^{235}U	0.06
^{238}U	0.94
^{16}O	3.00
^1H	2.00

Tableau 3.4: Composition molaire de la sphère externe.

Les deux types de source sont alors utilisés. La première est une source fixe qui émet 14000 protons de 1 GeV au centre de la sphère de plomb, ainsi la spallation est prise en compte. La deuxième est une source critique partant d'une distribution homogène dans la sphère. Dix mille

neutrons de fission sont simulés par cycle, 500 cycles sont réalisés dont 30 inactifs. Le calcul du coefficient de multiplication effectué avec cette source donne une valeur de 0.9730 avec une erreur relative inférieure à 0.0005.

Afin de pouvoir comparer les résultats obtenus par les deux calculs, nous renormalisons les résultats par le nombre total de neutrons créés dans chacune des simulations.

Nous obtenons alors la figure 3.14 des flux neutroniques en fonction de l'énergie pour les deux simulations. Nous observons que la part de neutrons de spallation, dont l'énergie est supérieure à la dizaine de MeV, est négligeable. Le flux neutronique correspondant est plus de 20 à 100 fois plus faible que celui compris entre 1 eV et 2 MeV. Pour des énergies inférieures à 10 MeV, les deux courbes se superposent et montrent donc que le spectre est quasiment identique.

L'analyse du rapport des deux spectres (figure 3.15) confirme ces observations. Les valeurs obtenues pour des énergies inférieures à environ 5 MeV sont très proches de 1. Au-delà de cette énergie, le rapport décroît très rapidement car le flux de neutrons de fission devient négligeable.

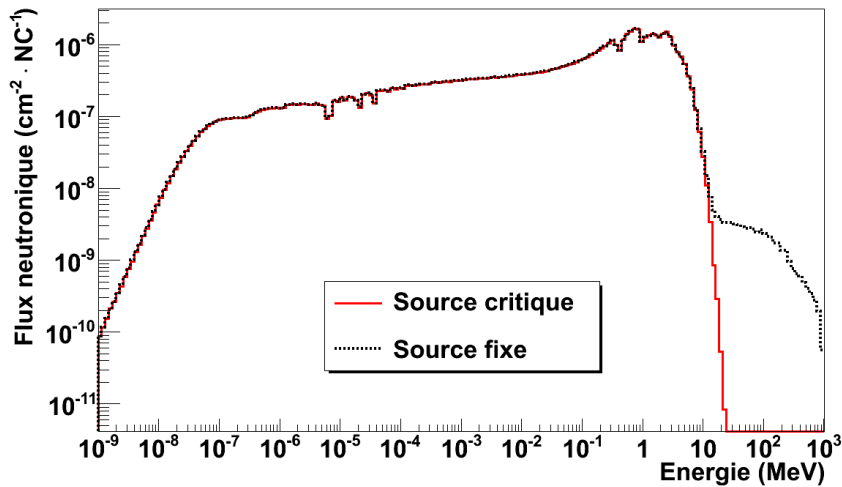


Figure 3.14: Flux neutronique par neutron créé en fonction de l'énergie des neutrons dans une boule homogène dont le k_{eff} est de 0.97. La courbe rouge en trait plein correspond au résultat d'un calcul réalisé par le code MCNPX avec une source critique et les pointillés noirs à une simulation utilisant une source fixe de proton de 1 GeV émis au centre du plomb situé dans la boule homogène. Les deux flux neutroniques sont renormalisés à partir du nombre de neutrons créés, NC , dans chacune des simulations.

Par contre la comparaison des flux neutroniques en fonction de la position (figure 3.16) montre clairement l'influence de la source externe. Le flux radial est nettement plus important au centre avec une source fixe qu'avec une source critique. Mais au delà d'un rayon de 30 cm les valeurs deviennent relativement proches.

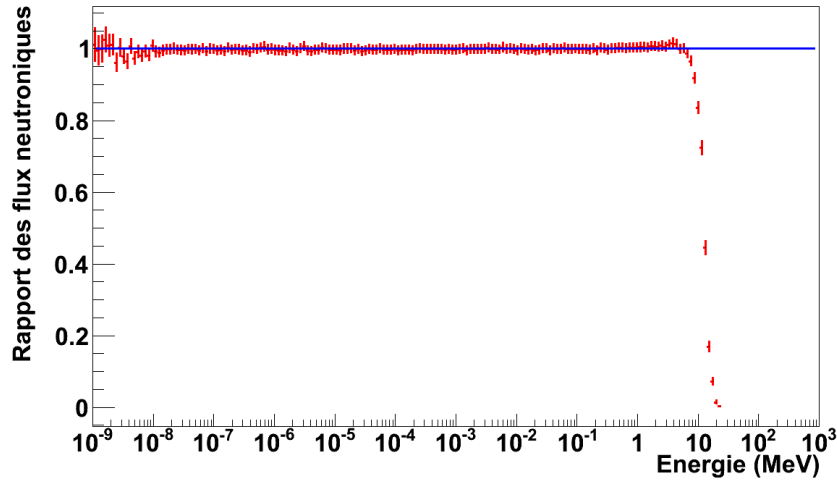


Figure 3.15: Rapport des deux spectres de la figure 3.14 avec les erreurs statistiques associées.

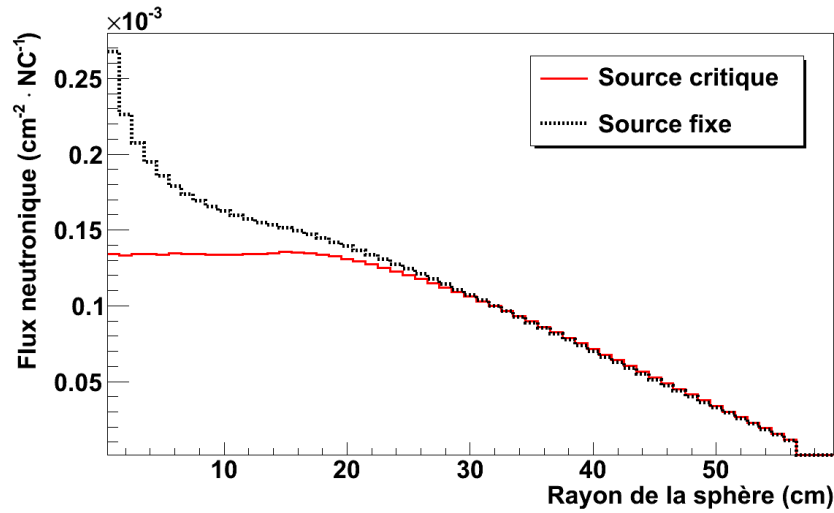


Figure 3.16: Flux neutronique radial par neutron créé dans une boule homogène dont le k_{eff} est de 0.97. La courbe rouge en trait plein correspond au résultat d'un calcul réalisé par le code MCNPX avec une source critique et les pointillés noirs à une simulation utilisant une source fixe de proton de 1 GeV émis au centre du plomb situé dans la boule homogène. Les deux flux neutroniques sont renormalisés à partir du nombre de neutrons créés, NC , dans chacune des simulations.

Pour les simulations d'évolution, nous utilisons le programme MURE en mode « multi-groupe » 3.2.2. Pour ce type de calcul, le flux en fonction de l'énergie est extrait de la simulation MCNPX. Ensuite, le code MURE détermine les sections efficaces microscopiques moyennées sur le flux qui seront intégrées à la matrice d'évolution à partir de la formule 3.12.

D'après cette équation, un facteur global sur le flux ne change pas la valeur des sections

efficaces. En revanche, un flux en énergie différent conduit à des sections efficaces distinctes.

Pour l'exemple développé dans cette partie, le flux en énergie est clairement constant pour le calcul avec une source fixe et critique. Les sections efficaces induites seront donc indépendantes du type de source utilisée.

Ensuite, le code MURE multiplie les sections efficaces par le flux de neutrons afin d'obtenir les taux de réaction. Dans ce cas, la valeur du flux neutronique est importante car elle modifie directement le résultat. Dans l'exemple étudié, l'intégration des deux courbes de la figure 3.14 montre des valeurs identiques dans le cas d'une source critique ou fixe, avec une très faible influence des neutrons de spallation.

Nous pouvons donc conclure que les éléments de matrice nécessaires au calcul d'évolution seront identiques. En conséquence, les calculs d'évolution des cœurs sous-critiques seront effectués par le code MCNPX avec une source critique.

Des calculs similaires pour plusieurs rayons de sphères homogènes ont donné des résultats semblables. Donc, en première approximation, nous généraliserons le cas de la sphère homogène au cas d'un réacteur réaliste avec une cible de spallation au centre.

Néanmoins, les flux neutroniques radiaux sont différents. De ce fait, si tout le cœur est simulé de manière homogène, alors une source critique suffit car les différences de flux sont prises en compte de manière global.

Par contre, si une analyse fine de l'évolution de cœur est nécessaire, comme par exemple, pour des plans de chargement, il est alors indispensable de travailler avec une source fixe. Cela implique de discrétiser l'ADS en différentes zones dont les évolutions sont calculées indépendamment.

Il est également envisageable d'extraire la nappe de flux d'une simulation de cœur avec une source fixe. Puis d'effectuer des simulations d'assemblages avec une source critique pour des valeurs de flux neutronique représentatives des différentes zones du cœur.

Chapitre 4

Dimensionnement d'un ADS MUST et caractérisation de son combustible

Dans ce chapitre, nous allons décrire la méthode suivie pour le dimensionnement du cœur d'un ADS MUST et la caractérisation de son combustible. Pour faciliter la compréhension du protocole, nous commencerons par son introduction synthétique. Ensuite, toutes les étapes nécessaires à la détermination avancée de la géométrie du cœur sous-critique et de sa composition seront expliquées en détail pour chaque scénario étudié. Elles seront accompagnées des résultats obtenus et de leurs analyses.

4.1 Introduction de la méthode

4.1.1 Notations

Le dimensionnement d'un ADS MUST et la composition de son combustible à l'équilibre sont effectués en fonction du caloporteur du réacteur sous-critique, de sa durée d'irradiation et de l'utilisation ou non d'assemblages de contrôle. Mais ils dépendent également, de la stratégie de transmutation et du type de réacteurs de la strate dédiée à la production d'électricité. Par conséquent, afin de simplifier les explications et notations, nous considérerons comme différentes toutes filières dont l'un de ces cinq paramètres est distinct.

Nous définissons également des codes construits à partir de ceux-ci, afin de différencier les filières (tableau 4.1). Ils sont composés de trois parties.

La première partie du code correspond au type de réacteur électrogène associé à l'ADS. La deuxième composante est le caloporteur de ce dernier et sa durée d'irradiation. Si le caloporteur est précédé de 95 cela signifie que l'ADS ne contient pas d'assemblage de contrôle. Enfin, la troisième partie définit la stratégie de transmutation. Le 1 signifie que seul l'américium est incinéré, et le 3 que le neptunium et le curium le sont également.

Par exemple, le code REP-Na5-3 désigne un ADS muni d'assemblages de contrôle à calo-

Code	Strate 1	Caloporteur ADS	Temps de cycle	Transmutation	Contrôle
REP-Na5-1	REP	Na	5 ans	Am	avec
REP-Na5-3	REP	Na	5 ans	Cm,Am,Np	avec
REP-Na7-1	REP	Na	7 ans	Am	avec
REP-Na7-3	REP	Na	7 ans	Cm,Am,Np	avec
SFR-Na5-1	SFR	Na	5 ans	Am	avec
SFR-Na5-3	SFR	Na	5 ans	Cm,Am,Np	avec
SFR-Na7-1	SFR	Na	7 ans	Am	avec
SFR-Na7-3	SFR	Na	7 ans	Cm,Am,Np	avec
REP-Pb3-1	REP	Pb	3 ans	Am	avec
REP-Pb3-3	REP	Pb	3 ans	Cm,Am,Np	avec
REP-Pb5-1	REP	Pb	5 ans	Am	avec
REP-Pb5-3	REP	Pb	5 ans	Cm,Am,Np	avec
SFR-Pb3-1	SFR	Pb	3 ans	Am	avec
SFR-Pb3-3	SFR	Pb	3 ans	Cm,Am,Np	avec
SFR-Pb5-1	SFR	Pb	5 ans	Am	avec
SFR-Pb5-3	SFR	Pb	5 ans	Cm,Am,Np	avec
REP-95Na5-1	REP	Na	5 ans	Am	sans
REP-95Na5-3	REP	Na	5 ans	Cm,Am,Np	sans
SFR-95Na5-1	SFR	Na	5 ans	Am	sans
SFR-95Na5-3	SFR	Na	5 ans	Cm,Am,Np	sans

Tableau 4.1: Code de description des filières d'ADS MUST.

porteur sodium dont la durée d'irradiation est de 5 ans et transmutant les Np, Am et Cm issus de réacteurs de type REP multi-recyclant le plutonium. De même, SFR-Pb3-1 identifie un ADS à caloporteur plomb contenant des assemblages de contrôle, de durée d'irradiation de 3 ans et transmutant uniquement l'américium produit par des SFR multi-recyclant le plutonium.

Dans le cas des réacteurs sans assemblage de contrôle, 95 est rajouté devant le caloporteur. Ce nombre correspond à la valeur du coefficient de multiplication en début de cycle qui est d'environ 0.95. Ainsi, un ADS MUST sans assemblage de contrôle à caloporteur sodium transmutant uniquement l'américium issu de SFR est désigné par SFR-95Na5-1.

4.1.2 Gestion des assemblages du cœur sous-critique

L'objectif de l'étude du concept d'ADS MUST est d'estimer le potentiel d'un système sous-critique de grande puissance et ayant un flux neutronique relativement homogène dans le cœur.

Pour cela, ce type d'ADS utilise plusieurs cibles de spallation et un combustible supposé irradié de la même manière, à l'inverse des concepts munis d'une unique cible de spallation mais composés de plusieurs types d'assemblage.

À la fin de chaque cycle d'irradiation l'ensemble des assemblages sont extraits des ADS MUST et sont remplacés par du combustible neuf.

Cette approche permet de simplifier la méthode présentée dans ce chapitre. En effet, le nombre de paramètres ouverts étant déjà relativement élevé, une gestion par plan de chargement aurait conduit à alourdir encore le processus de dimensionnement.

Les simulations sont ainsi effectuées avec des assemblages identiques et un combustible homogène dans l'ensemble du cœur. Le système et sa gestion durant le cycle sont également simplifiés et les calculs plus courts, tout en permettant d'obtenir des grandeurs caractéristiques des ADS MUST.

L'irradiation du cœur n'étant pas parfaitement homogène, il est envisageable dans de futures études, d'étudier l'utilisation de plans de chargement afin que les assemblages sortent du réacteur avec des taux de transmutation équivalents.

4.1.3 Hypothèse de simulation d'évolution du cœur sous-critique

Chaque cible de spallation fournissant un flux neutronique très piqué, il ne sera pas possible d'obtenir un flux parfaitement uniforme avec des assemblages identiques dans l'ensemble du cœur. Or le taux de transmutation sur une période donnée dépend de la valeur du flux neutronique. Donc un système, qui présente plusieurs zones de flux différents, conduit sur une même durée à un taux de transmutation dépendant de la position dans le cœur.

En théorie, pour simuler un réacteur de ce type, il faut discrétiser son cœur en plusieurs parties dont l'irradiation est homogène. Ensuite deux approches sont possibles.

La première est de faire des calculs à partir d'assemblages de différentes puissances. Puis de reconstruire les différentes parties du cœur en comparant le flux neutronique obtenu dans les assemblages.

La deuxième solution est d'effectuer un calcul sur l'ensemble du système en simulant l'évolution de plusieurs zones distinctes. Les différences de flux reçus sont alors prises en compte.

Mais comme le tableau 4.1 le montre, de nombreuses filières sont à dimensionner et autant de compositions de combustible à l'équilibre à calculer. Les deux approches précédentes étant consommatrices de temps de calculs, nous avons opté pour une méthode de simulation simplifiée.

Les calculs d'évolution du combustible avec le code MURE seront donc réalisés par la simulation de l'ensemble du cœur. Le flux de neutrons en fonction de l'énergie $\phi(E)$ sera intégré spatialement sur le volume de la zone de combustible, tel que :

$$\phi(E) = \int \frac{d\phi(E, \vec{r})}{dV} \cdot dV \quad (4.1)$$

Et les valeurs des taux de réactions nécessaires pour le calcul de l'évolution du combustible seront obtenues à partir de $\phi(E)$.

L'estimation de l'écart entre notre méthode simplifiée et une méthode plus précise est décrite en annexe B.

4.1.4 Présentation sommaire du protocole

Cette partie présente très rapidement la méthode suivie pour le dimensionnement de l'ADS MUST et de son combustible à l'équilibre. L'objectif est de donner une trame du protocole pour faciliter sa compréhension. Chaque étape est ensuite développée en détail dans les parties suivantes.

Détermination du flux de matière à transmuter

Pour commencer, nous établissons le vecteur isotopique à transmuter. Il dépend du type de réacteur dont sont issus les actinides mineurs. Nous étudierons l'association d'ADS avec des premières strates composées de REP et de SFR qui multi-recyclent le plutonium.

Bien sûr, il est également lié à la stratégie de transmutation. Deux approches seront également abordées avec la gestion de l'américium seul ou accompagné du neptunium et du curium. Il y a par conséquent quatre flux de matière différents pour l'ensemble des configurations étudiées.

Caractéristiques préliminaires de l'ADS

Nous fixons ensuite le caloporteur de l'ADS MUST car il impose la géométrie des assemblages combustibles et certaines propriétés de fonctionnement. Nous fixons également la durée d'irradiation du cœur qui a une forte influence sur la composition du combustible.

Premier vecteur isotopique à l'équilibre

À l'aide des paramètres fixés dans les deux étapes précédentes, un premier vecteur approximatif de noyaux lourds à l'équilibre est calculé avec le code ACDC. Les valeurs des sections efficaces de fission, de capture et de réaction (n,2n) sont prises à 500 keV et le flux neutronique est fixé à $10^{15} n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$. L'uranium, le plutonium et les actinides mineurs destinés à être transmutés sont recyclés. Nous calculons 40 cycles afin d'obtenir un vecteur isotopique à l'équilibre.

Dimensionnement

À partir de la composition à l'équilibre de début de cycle obtenue, la géométrie du cœur est fixée. C'est-à-dire la distance entre les cibles de spallation, ainsi que les limites de la zone de combustible. Pour cela, le flux neutronique en fonction de la position est calculé dans un ADS à une cible ayant un rayon suffisamment grand de manière à négliger les fuites radiales. Le combustible de ce réacteur est composé du premier vecteur isotopique auquel une matrice inerte est ajoutée afin d'obtenir un k_{eff} proche de 0.97.

Nous testons alors de nombreuses configurations à trois cibles pour lesquelles le flux en fonction de la position est supposé être la somme de trois flux à une cible. La configuration finale du cœur est sélectionnée lorsque le flux radial est jugé suffisamment constant tout en maximisant le nombre d'assemblages.

Deux approches ont été étudiées pour la gestion de la réactivité en cours d'irradiation. La première consiste à ajouter des assemblages de contrôle au système afin de maintenir le k_{eff} autour de 0.97 durant l'irradiation. Pour la deuxième approche les ADS MUST ne contiennent pas d'assemblage de contrôle mais leur coefficient de multiplication en début de cycle est d'environ 0.95 afin de conserver une marge suffisante avec un régime critique.

Enfin, la quantité de matrice inerte est ajustée pour atteindre le coefficient de multiplication souhaité. On obtient ainsi le premier combustible.

Deuxième combustible à l'équilibre

Une simulation du système défini précédemment est effectuée avec le programme MURE, afin d'en extraire les sections efficaces microscopiques moyennées sur le flux en énergie. Puis

elles sont injectées dans le fichier d'entrée du code ACDC. Un calcul de mise à l'équilibre est alors effectué pour améliorer le vecteur de noyaux lourds à l'équilibre.

Le combustible du réacteur étudié est alors obtenu en ajoutant à ce dernier la proportion de matrice inerte nécessaire à l'obtention d'un k_{eff} du cœur d'environ 0.97 ou 0.95 suivant s'il est muni d'assemblages de contrôle ou non.

Détermination de la puissance thermique

L'objectif est ensuite de calculer la puissance de l'ADS MUST de chaque filière. Pour cela, la cartographie du flux neutronique est calculée, avec le nouveau combustible. Ainsi sa valeur maximale et moyenne sont extraites.

Des calculs couplés de neutronique et de thermo-hydraulique sont ensuite réalisés pour extraire la température du point chaud du combustible en fonction de la puissance délivrée par les crayons. La température de fonctionnement étant fixée, nous obtenons la puissance de fonctionnement maximale des crayons.

À l'aide de celle-ci et des caractéristiques du flux, il est alors possible de calculer la puissance thermique du cœur et son flux neutronique.

Détermination de l'intensité du faisceau

Puis, une simulation est effectuée avec le programme MCNPX, pour extraire l'énergie déposée dans les crayons soumis au flux neutronique le plus intense. À partir de cette valeur et de la puissance maximale admissible dans un crayon, l'intensité du faisceau de protons de la source externe est estimée et la puissance thermique du cœur réévaluée.

Combustible à l'équilibre

Enfin, avec la nouvelle valeur du flux neutronique dans le cœur, une autre optimisation de la composition du vecteur isotopique est réalisée pour obtenir le combustible de l'ADS à l'équilibre. Pour cela une simulation est donc, une nouvelle fois, effectuée avec le code ACDC en partant du nouveau flux et du dernier vecteur isotopique. Le résultat obtenu est ajusté avec la matrice inerte afin d'avoir un k_{eff} d'environ 0.97 ou 0.95 suivant si l'ADS est muni d'assemblages de contrôle ou non.

4.2 Détermination du flux de matière à transmuter

Nous avons mis en évidence les différences de masses et de proportions isotopiques d'actinides mineurs produites par des REP et des SFR multi-recyclant leur Pu, après 5 années de refroidissement (tableau 2.4).

Ainsi le point de départ de ce protocole est la description du scénario étudié afin de connaître le flux de matière à transmuter. Pour cela, le type de réacteur de la première strate associé à l'ADS MUST est défini.

Puis la stratégie de transmutation adoptée doit être fixée. Le combustible est très différent si l'on incinère tous les actinides mineurs ou seulement l'américium. Et le comportement du réacteur est par conséquent dépendant de cette stratégie.

A partir du tableau 2.4 et des stratégies de transmutation, nous obtenons donc quatre vecteurs isotopiques à transmuter (tableau 4.2) suivant le scénario étudié.

Strate 1	REP		SFR	
Stratégie de transmutation	Am seul (% mol)	Np, Am, Cm (% mol)	Am seul (% mol)	Np, Am, Cm (% mol)
^{237}Np	—	17.980	—	11.564
^{241}Am	60.69	42.620	83.815	71.676
^{242m}Am	0.69	0.484	—	—
^{243}Am	38.62	27.122	16.185	13.841
^{242}Cm	—	—	—	0.024
^{243}Cm	—	0.095	—	—
^{244}Cm	—	9.926	—	2.895
^{245}Cm	—	1.702	—	—
^{246}Cm	—	0.071	—	—
^{247}Cm	—	0.001	—	—

Tableau 4.2: Proportions molaires (en %) des actinides mineurs produits par une strate de REP ou de SFR multi-recyclant le plutonium (tableau 2.4) et destinés à la transmutation en ADS MUST.

Une fois le type de réacteur associé à l'ADS et la stratégie de transmutation définie, le vecteur isotopique à transmuter est connu et restera inchangé pour l'ensemble du protocole de dimensionnement.

4.3 Caractéristiques préliminaires de l'ADS MUST

À cette étape, nous fixons les caractéristiques initiales de l'ADS MUST.

La première est le type de caloporteur utilisé car il impose la configuration de l'assemblage. Un réacteur refroidi au plomb a environ 50 % du volume de ses assemblages dédié au fluide caloporteur [36]. En comparaison le sodium en occupe seulement le quart dans un SFR [34].

Nous avons fait le choix d'étudier uniquement ces deux types de caloporteur. Mais il y en a d'autres permettant d'obtenir un spectre rapide comme par exemple l'hélium.

Il existe également plusieurs types de combustible disponibles [63]. Nous pouvons citer par exemple les combustibles oxydes, nitriques, métalliques ou carbures... En France, la forme oxyde est la plus développée, c'est la raison pour laquelle nos études sont effectuées avec un combustible du type NLO₂, où NL est un noyau lourd (uranium, plutonium ou un actinide mineur).

Le combustible dédié à la transmutation est généralement mélangé à une matrice inerte. Il en existe plusieurs types [64] [65]. Nous pouvons citer, par exemple, celles composées de Cr, ZrO₂, W, Mo ou encore de MgO. C'est cette dernière que nous avons utilisée pour dimensionner les ADS MUST.

Ces matrices ont pour caractéristique d'avoir un faible pouvoir d'absorption neutronique, comme le montre la figure 4.1 représentant les sections efficaces de capture radiative, de diffusion élastique et totale du MgO. Par contre ces molécules diffusent les neutrons, ce qui tend à les ralentir légèrement, et donc à défavoriser un peu la transmutation car comme nous l'avons vu au chapitre 2, il est préférable d'avoir des neutrons rapides. Mais leur « transparence » aux neutrons permet de ne pas conduire à la formation d'éléments radioactifs [66].

D'autre part, l'augmentation de sa proportion dans un combustible diminue la quantité de noyaux fissiles. Et par conséquent, le nombre de neutrons disponibles pour faire des fissions décroît car les fuites augmentent. La matrice inerte permet donc d'ajuster la réactivité d'un cœur.

Mais, elle permet aussi comme le montre la figure 4.2 d'améliorer nettement la conductivité thermique des crayons afin de faciliter leur refroidissement. Plus la quantité de chaleur extraite du combustible est importante, plus la puissance dégagée par un crayon peut être élevée pour une même température de fonctionnement.

Enfin, la durée d'irradiation de l'ADS MUST est également à définir. Elle a une influence importante sur la composition du combustible. Pour les réacteurs à caloporteur plomb des durées d'irradiation de 3 et 5 ans sont étudiées. La première est la valeur utilisée pour le concept d'ADS EFIT [31]. Nous avons également considéré une durée d'irradiation de 5 ans comme

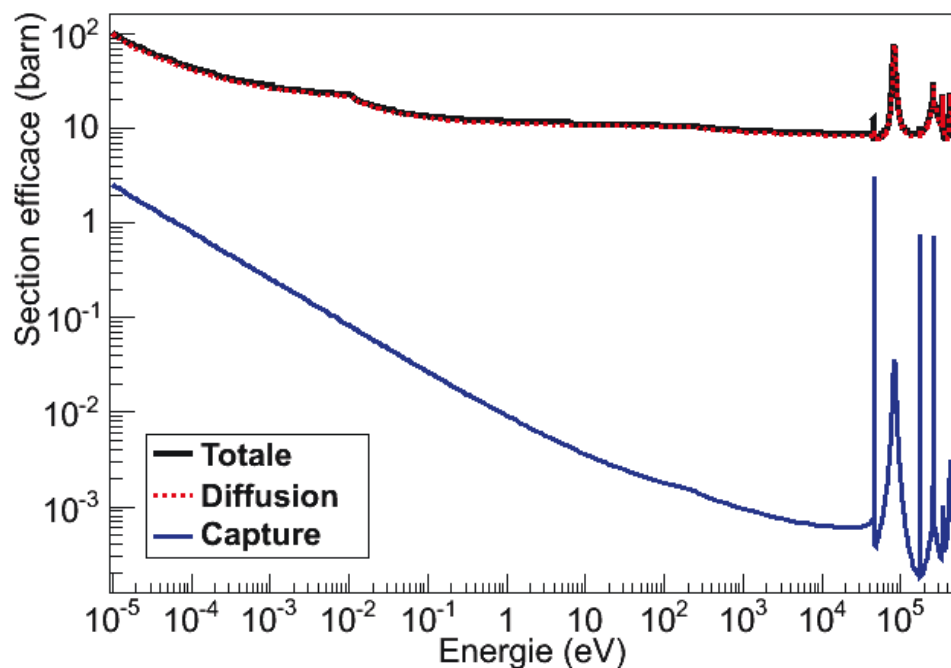


Figure 4.1: Sections efficaces du MgO en fonction de l'énergie du neutron incident. La courbe noire correspond à la section efficace totale, la courbe bleue à la section efficace de capture radiative et la courbe discontinue rouge à la section efficace de diffusion élastique. Les valeurs sont issues de la base de données ENDF-B7 [10]

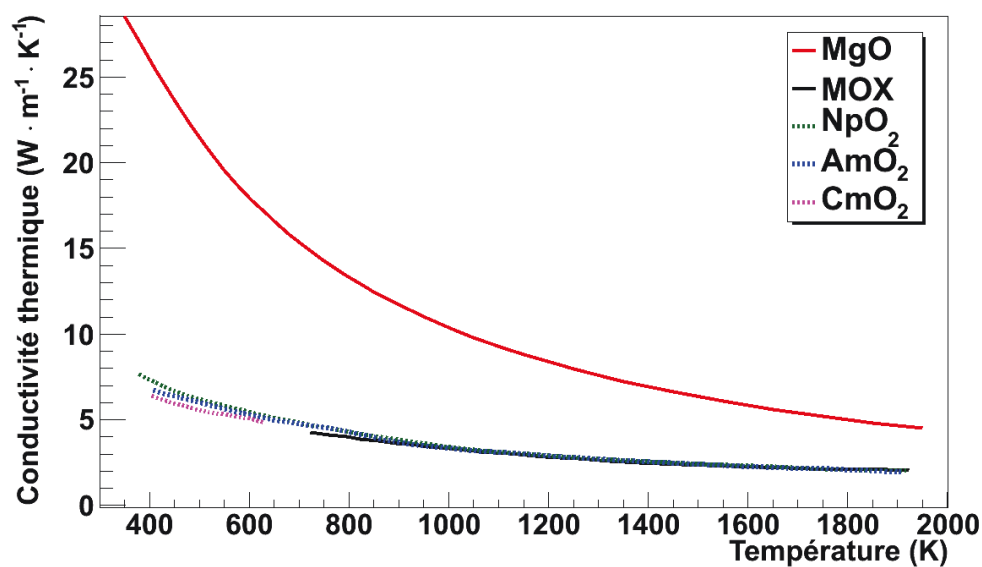


Figure 4.2: Conductivité thermique du MgO [67], du MOX [68], du NpO₂ [69], de l'AmO₂ [69] et du CmO₂ [69] en fonction de la température.

pour le concept BREST-1300 (Bistrii Reactor Estesvennoy bezopasnosti so Svintsovim Teplo-nositelem) [36], un réacteur critique à caloporteur plomb.

Des durées d'irradiation de 5 et 7 ans sont présentées pour les ADS au sodium. En comparaison, les SFR sont généralement étudiés pour plus de 5 ans équivalent pleine puissance. Par exemple, les études des références [34] et [32] prévoient pour un assemblage 2050 jours d'irradiation, soit un fonctionnement du cœur de plus de 5.6 ans à une puissance thermique de 3600 MW .

Le tableau 4.3 répertorie les options disponibles. Les caractéristiques soulignées sont celles utilisées dans les études présentées dans cette thèse.

Caloporteur	<u>Sodium</u> , <u>Plomb</u> , Hélium...
Type de combustible	<u>Oxyde</u> , <u>nitrique</u> , métallique, carbure...
Matrice inerte	<u>MgO</u> , Cr, ZrO ₂ , W, Mo...
Durée d'irradiation	<u>3</u> , 4, <u>5</u> , 6, <u>7</u> ...

Tableau 4.3: Options disponibles pour fixer les caractéristiques préliminaires de l'ADS MUST

4.4 Premier vecteur isotopique à l'équilibre

Pour dimensionner le cœur, une première estimation de la composition du combustible à l'équilibre est calculée avec le code ACDC.

Pour cela, les sections efficaces de capture et de fission utilisées sont les valeurs à 500 keV de la base de données ENDF-B-VII [10]. Le flux neutronique est fixé à $10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ car c'est l'ordre de grandeur au sein d'un réacteur à neutrons rapides [70]. Le temps de refroidissement du combustible est défini à 5 ans et sa fabrication à 2 ans, durées de référence dans les études de scénarios [71]. Ces paramètres récapitulés dans tableau le 4.4, sont appliqués à toutes les filières pour commencer le protocole.

Les autres paramètres dépendent du scénario étudié. Le flux d'actinides mineurs issu de la première strate et destiné à être transmuté est défini à partir des valeurs du tableau 4.2. Les éléments multi-recyclés et ceux envoyés aux déchets en fin de cycle sont également spécifiés.

Dans les filières étudiées, les éléments à transmuter sont multi-recyclés, de même que l'uranium et le plutonium. Par contre, l'isotope 232 du thorium dont la quantité est négligeable, les produits de fission et les actinides mineurs non destinés à la transmutation sont considérés comme des déchets.

Enfin la durée d'irradiation de l'ADS MUST est adaptée à chacune des filières conformément au tableau 4.3.

Flux neutronique	$1.10^{15} \text{ (n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1})$
Durée de refroidissement du combustible	5 ans
Durée de fabrication du combustible	2 ans
Pertes isotopiques lors des traitements	0,0001%
Sections efficaces de capture et de fission	ENDFB 7 à 500 keV

Tableau 4.4: Paramètres d'entrée du code ACDC fixés pour tous les ADS lors du calcul du premier combustible.

Ainsi, avec le code ACDC, nous effectuons un calcul d'évolution sur 40 cycles avec ces paramètres afin d'obtenir un premier combustible à l'équilibre. Pour illustrer cette étape, nous pouvons étudier l'exemple de la filière dans laquelle un ADS MUST, avec un cycle d'irradiation de 5 ans, transmute seulement l'américium issu de réacteurs de type REP. La composition de noyaux lourds de départ pour ce calcul correspond aux proportions isotopiques de l'ensemble des actinides produits par la première strate (troisième colonne du tableau 4.2).

La figure 4.3 correspond à l'évolution de la proportion molaire des principaux isotopes de l'américium au cours des 40 cycles, calculée avec le code ACDC. Le combustible est uniquement composé d'américium dans les proportions décrites pour cette filière dans le tableau 4.2. La quantité restante de cet élément est multi-recyclée d'un cycle à l'autre et elle est également complétée par la part de noyaux considérés comme des déchets (produits de fission, neptunium et curium).

Nous remarquons une diminution des proportions d' ^{241}Am . La quantité rechargée est donc inférieure à la part de ces isotopes disparus. La proportion manquante correspond aux proportions d'uranium et de plutonium produites lors du cycle et notamment les trois principaux noyaux représentés sur la figure 4.4 : ^{234}U , ^{238}Pu et ^{240}Pu .

La capture neutronique d'un noyau de ^{241}Am produit du ^{242}Am qui décroît instantanément vers le ^{242}Cm dont la période est de 162.8 jours. La décroissance radioactive de ce dernier crée du ^{238}Pu . Nous observons d'ailleurs une rapide augmentation de sa quantité. De même, la capture neutronique des noyaux de ^{243}Am produit du ^{244}Cm qui décroît en environ 18 ans vers le ^{240}Pu .

La croissance de la quantité de l'isotope 234 de l'uranium est liée au ^{238}Pu . En effet, des noyaux de ^{234}U sont créés par décroissance radioactive du ^{238}Pu durant les périodes d'irradiation, de refroidissement et de fabrication. Ces deux dernières phases expliquent pourquoi lors des derniers cycles la proportion de ^{234}U en fin d'irradiation est inférieure à celle du début de

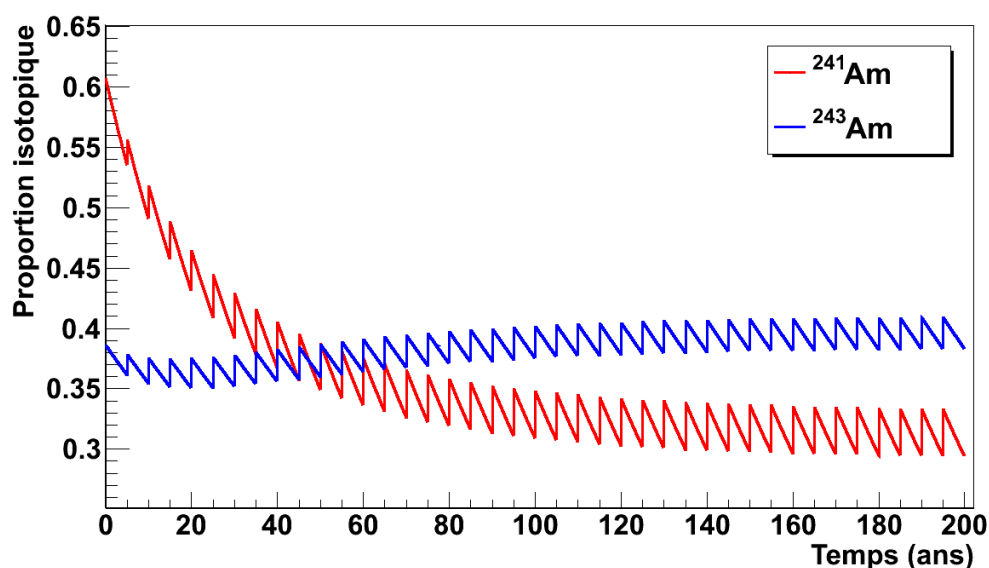


Figure 4.3: Évolution de la proportion isotopique de l' ^{241}Am et de l' ^{243}Am durant 40 cycles (200 ans) calculée avec le code ACDC pour la filière REP-Na5-1.

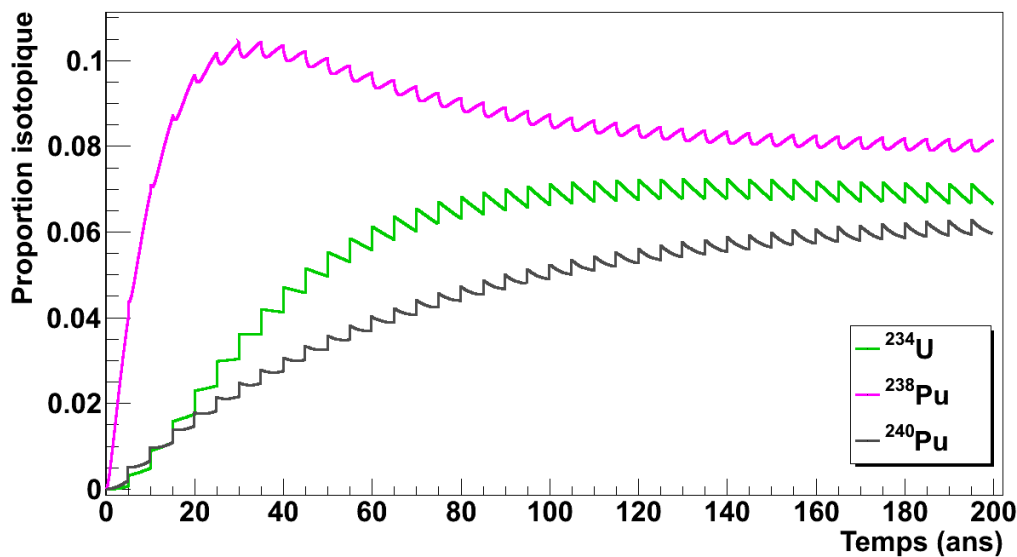


Figure 4.4: Évolution de la proportion isotopique de l' ^{234}U , du ^{238}Pu et du ^{240}Pu durant 40 cycles (200 ans) calculée avec le code ACDC pour la filière REP-Na5-1.

la suivante (figure 4.5). C'est également vrai pour le ^{240}Pu qui est produit par le ^{244}Cm durant le refroidissement avant d'être envoyé aux déchets.

Enfin, nous pouvons remarquer que les évolutions des proportions isotopiques sont de plus en plus proches lors des derniers cycles. La composition tend donc vers l'équilibre, mais quelques cycles supplémentaires seraient nécessaires pour l'atteindre.

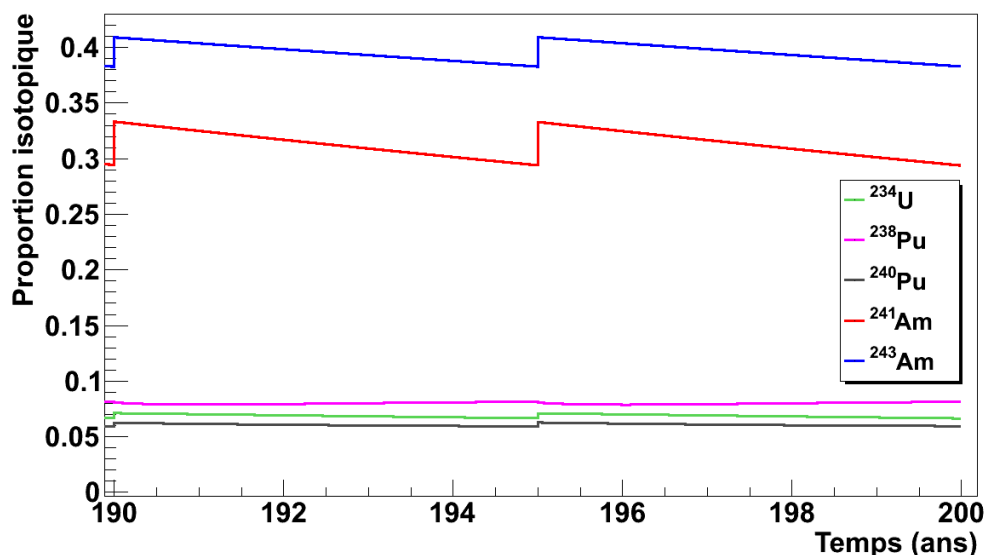


Figure 4.5: Deux derniers cycles de l'évolution de la proportion isotopique de l' ^{241}Am , de l' ^{243}Am , de l' ^{234}U , du ^{238}Pu et du ^{240}Pu durant 40 cycles (200 ans) calculée avec le code ACDC pour la filière REP-Na5-1.

Les tableaux 4.5, 4.6, 4.7 et 4.8 récapitulent les premiers vecteurs isotopiques à l'équilibre obtenus pour chacune des filières. Les flux neutroniques et les sections efficaces étant identiques pour l'ensemble des calculs, les écarts entre les compositions sont liés aux durées d'irradiation de l'ADS, au type de réacteur de la première strate et à la stratégie de transmutation.

Dans un premier temps, nous pouvons comparer les vecteurs isotopiques obtenus pour une composition de première strate et une stratégie de transmutation identique. Nous observons de faibles fluctuations des résultats pour des durées d'irradiation différentes. Ce paramètre n'est donc pas la principale cause des écarts de compositions isotopiques.

Deuxièmement, nous allons étudier l'effet du type de réacteur composant la première strate en comparant des filières ayant une stratégie de transmutation identique. Nous remarquons des différences dans les proportions isotopiques de l'américium suivant si les actinides mineurs sont produits en REP ou en SFR (tableaux 4.5 à 4.8). Il y a en effet, de l'ordre de 1.5 à 1.7 fois plus de ^{241}Am pour les filières dans lesquels les ADS sont associés à des SFR. Inversement le ^{243}Am est entre 1.7 et 2.2 fois plus abondant pour des filières dont la première strate est composée de REP. Il y a également un léger déficit de ^{238}Pu dont nous avons déjà vu le lien avec l' ^{241}Am . Ces écarts s'expliquent par les différences de proportions isotopiques des deux flux de matières présentées dans le tableau 4.2.

Isotopes	Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds			
	REP-Na5-1	REP-Na5-3	REP-Na7-1	REP-Na7-3
^{234}U	$7.1 \cdot 10^{-2}$	$6.4 \cdot 10^{-2}$	$6.1 \cdot 10^{-2}$	$5.5 \cdot 10^{-2}$
^{237}Np	—	$1.2 \cdot 10^{-1}$	—	$1.1 \cdot 10^{-1}$
^{238}Pu	$8.1 \cdot 10^{-2}$	$7.2 \cdot 10^{-2}$	$8.3 \cdot 10^{-2}$	$7.5 \cdot 10^{-2}$
^{239}Pu	$1.6 \cdot 10^{-2}$	$1.4 \cdot 10^{-2}$	$1.6 \cdot 10^{-2}$	$1.4 \cdot 10^{-2}$
^{240}Pu	$6.3 \cdot 10^{-2}$	$1.8 \cdot 10^{-1}$	$7.0 \cdot 10^{-2}$	$1.8 \cdot 10^{-1}$
^{241}Am	$3.3 \cdot 10^{-1}$	$2.2 \cdot 10^{-1}$	$3.4 \cdot 10^{-1}$	$2.3 \cdot 10^{-1}$
^{243}Am	$4.1 \cdot 10^{-1}$	$2.5 \cdot 10^{-1}$	$4.0 \cdot 10^{-1}$	$2.6 \cdot 10^{-1}$
^{244}Cm	—	$3.5 \cdot 10^{-2}$	—	$4.0 \cdot 10^{-2}$
^{245}Cm	—	—	—	$1.0 \cdot 10^{-2}$

Tableau 4.5: Premier vecteur isotopique de noyaux lourds pour le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Proportion isotopique molaire des noyaux lourds présents à plus de 1 %. Les « - » signifient que la proportion de l'isotope est inférieure à 1 %.

Isotopes (% mol)	Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds			
	SFR-Na5-1	SFR-Na5-3	SFR-Na7-1	SFR-Na7-3
^{234}U	$1.1 \cdot 10^{-1}$	$9.7 \cdot 10^{-2}$	$9.1 \cdot 10^{-2}$	$8.4 \cdot 10^{-2}$
^{235}U	$1.3 \cdot 10^{-2}$	$1.7 \cdot 10^{-2}$	$1.1 \cdot 10^{-2}$	$1.0 \cdot 10^{-2}$
^{237}Np	—	$1.1 \cdot 10^{-1}$	—	$1.0 \cdot 10^{-1}$
^{238}Pu	$1.2 \cdot 10^{-1}$	$1.1 \cdot 10^{-1}$	$1.2 \cdot 10^{-1}$	$1.1 \cdot 10^{-1}$
^{239}Pu	$2.1 \cdot 10^{-2}$	$1.9 \cdot 10^{-2}$	$2.2 \cdot 10^{-2}$	$2.0 \cdot 10^{-2}$
^{240}Pu	$3.1 \cdot 10^{-2}$	$9.0 \cdot 10^{-2}$	$3.5 \cdot 10^{-2}$	$9.0 \cdot 10^{-2}$
^{241}Am	$5.0 \cdot 10^{-1}$	$3.8 \cdot 10^{-1}$	$5.1 \cdot 10^{-1}$	$3.9 \cdot 10^{-1}$
^{242m}Am	$1.1 \cdot 10^{-2}$	—	$1.1 \cdot 10^{-2}$	—
^{243}Am	$1.9 \cdot 10^{-1}$	$1.4 \cdot 10^{-1}$	$1.9 \cdot 10^{-1}$	$1.4 \cdot 10^{-1}$
^{244}Cm	—	$1.6 \cdot 10^{-2}$	—	$1.9 \cdot 10^{-2}$

Tableau 4.6: Premier vecteur isotopique de noyaux lourds pour le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Proportion isotopique molaire des noyaux lourds présents à plus de 1 %. Les « - » signifient que la proportion de l'isotope est inférieure à 1 %.

Isotopes (% mol)	Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds			
	REP-Pb3-1	REP-Pb3-3	REP-Pb5-1	REP-Pb5-3
^{234}U	$8.9 \cdot 10^{-2}$	$8.2 \cdot 10^{-2}$	$7.1 \cdot 10^{-2}$	$6.4 \cdot 10^{-2}$
^{235}U	$1.0 \cdot 10^{-2}$	—	—	—
^{237}Np	—	$1.3 \cdot 10^{-1}$	—	$1.2 \cdot 10^{-1}$
^{238}Pu	$7.5 \cdot 10^{-2}$	$6.8 \cdot 10^{-2}$	$8.1 \cdot 10^{-2}$	$7.2 \cdot 10^{-2}$
^{239}Pu	$1.5 \cdot 10^{-2}$	$1.4 \cdot 10^{-2}$	$1.5 \cdot 10^{-2}$	$1.4 \cdot 10^{-2}$
^{240}Pu	$5.3 \cdot 10^{-2}$	$1.8 \cdot 10^{-1}$	$6.3 \cdot 10^{-2}$	$1.8 \cdot 10^{-1}$
^{241}Am	$3.3 \cdot 10^{-1}$	$2.1 \cdot 10^{-1}$	$3.3 \cdot 10^{-1}$	$2.2 \cdot 10^{-1}$
^{243}Am	$4.1 \cdot 10^{-1}$	$2.5 \cdot 10^{-1}$	$4.1 \cdot 10^{-1}$	$2.5 \cdot 10^{-1}$
^{244}Cm	—	$2.6 \cdot 10^{-2}$	—	$3.4 \cdot 10^{-2}$

Tableau 4.7: Premier vecteur isotopique de noyaux lourds pour le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Proportion isotopique molaire des noyaux lourds présents à plus de 1 %. Les « - » signifient que la proportion de l'isotope est inférieure à 1 %.

Isotopes (% mol)	Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds			
	SFR-Pb3-1	SFR-Pb3-3	SFR-Pb5-1	SFR-Pb5-3
^{234}U	$1.3 \cdot 10^{-1}$	$1.2 \cdot 10^{-1}$	$1.1 \cdot 10^{-1}$	$9.7 \cdot 10^{-2}$
^{235}U	$1.5 \cdot 10^{-2}$	$1.4 \cdot 10^{-2}$	$1.3 \cdot 10^{-2}$	$1.2 \cdot 10^{-2}$
^{237}Np	—	$1.3 \cdot 10^{-1}$	—	$1.1 \cdot 10^{-1}$
^{238}Pu	$1.1 \cdot 10^{-1}$	$1.0 \cdot 10^{-1}$	$1.2 \cdot 10^{-1}$	$1.1 \cdot 10^{-1}$
^{239}Pu	$2.0 \cdot 10^{-2}$	$1.9 \cdot 10^{-2}$	$2.1 \cdot 10^{-2}$	$1.9 \cdot 10^{-2}$
^{240}Pu	$2.6 \cdot 10^{-2}$	$8.5 \cdot 10^{-2}$	$3.1 \cdot 10^{-2}$	$9.0 \cdot 10^{-2}$
^{241}Am	$4.9 \cdot 10^{-1}$	$3.6 \cdot 10^{-1}$	$5.0 \cdot 10^{-1}$	$3.8 \cdot 10^{-1}$
^{242m}Am	$1.1 \cdot 10^{-2}$	—	$1.1 \cdot 10^{-2}$	—
^{243}Am	$1.9 \cdot 10^{-1}$	$1.4 \cdot 10^{-1}$	$1.9 \cdot 10^{-1}$	$1.4 \cdot 10^{-1}$
^{244}Cm	—	$1.2 \cdot 10^{-2}$	—	$1.6 \cdot 10^{-2}$

Tableau 4.8: Premier vecteur isotopique de noyaux lourds pour le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Proportion isotopique molaire des noyaux lourds présents à plus de 1 %. Les « - » signifient que la proportion de l'isotope est inférieure à 1 %.

Enfin, nous analysons des filières dont la seule différence est la stratégie de transmutation. Nous remarquons que les proportions d' ^{241}Am et d' ^{243}Am sont environ 1.5 fois plus faibles dans les filières où tous les actinides mineurs sont transmutés.

Ces écarts peuvent s'expliquer principalement par une quantité de ^{237}Np négligeable dans les filières ne transmutant que l'américium, alors que le neptunium est présent à plus 1 % lorsque l'ensemble des actinides mineurs sont transmutés. Mais également par une proportion de ^{240}Pu environ 3 fois plus grande, car il est produit par la décroissance radioactive du ^{244}Cm . Il faut également prendre en compte le curium, en quantités très négligeables, dans les scénarios où seul l'américium est destiné à la transmutation.

Les proportions estimées à cette étape permettent de commencer à dimensionner le cœur en suivant une méthode générique. Par la suite, elles seront affinées à partir des caractéristiques de chaque système.

4.5 Dimensionnement

4.5.1 Géométrie des assemblages

La géométrie des assemblages est directement liée au caloporteur de l'ADS. Pour un réacteur au sodium, l'assemblage et les crayons utilisés sont identiques à ceux des SFR [34] [38]. Ils mesurent un mètre de haut, et comme le montre la figure 4.6, ils ont une structure hexagonale. La distance plan à plan des faces extérieures de l'assemblage est de 206.8 mm.

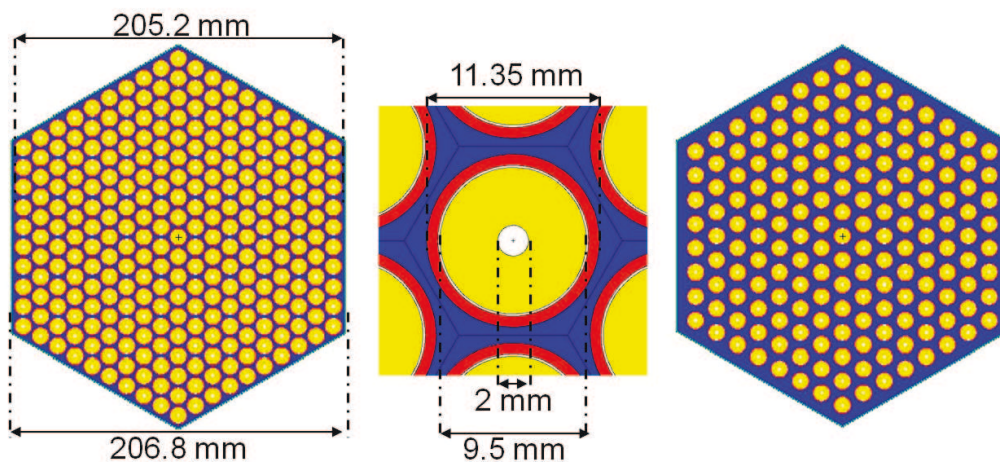


Figure 4.6: Schéma d'un assemblage d'un ADS MUST à caloporteur sodium à gauche, d'un crayon de combustible au centre, et d'un assemblage d'un ADS MUST à caloporteur plomb à droite.

Les crayons de combustible sont composés d'une gaine au sein de laquelle sont placées les pastilles de combustible percées d'un trou dont les diamètres respectifs sont de 11.2 mm, 9.5

mm et 2 mm. Un léger espace de 0.15 mm est également laissé entre la gaine et la pastille. Le trou central de la pastille et l'espacement avec la gaine permettent principalement d'anticiper le gonflement du combustible sous l'effet de la chaleur et de contenir les éléments volatiles produits lors du fonctionnement du cœur.

Les structures des assemblages sont en acier EM10 [72]. Pour les simulations, la composition est simplifiée (tableau 4.9). La plupart des éléments sont représentés uniquement par leur isotope le plus abondant.

Les gaines des crayons sont en 15-15Ti [73]. La composition utilisée est donnée par le tableau 4.9. Elle est simplifiée de la même façon que pour l'acier des structures d'assemblages. La densité des aciers utilisés pour les structures des assemblages et les gaines des crayons est fixée à $7.781 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ et leurs températures à 740 K qui est l'ordre de grandeur pour un réacteur à caloporteur sodium.

Isotopes	Proportion molaire	
	Assemblage	Gaine
^{42}Mo	0.0101	0.012
^{28}Ni	—	0.150
^{26}Fe	0.8896	0.660
^{25}Mn	0.0052	0.015
^{24}Cr	0.0874	0.150
^{22}Ti	—	0.004
^{14}Si	0.0039	0.006
^{13}Al	0.0002	—
^{12}Mg	0.0011	—
O naturel	0.0016	—
C naturel	0.0009	0.001

Tableau 4.9: Composition en pourcentage molaire des aciers simulés pour les structures d'assemblages et pour les gaines des crayons. Les éléments, dont la composition isotopique naturelle est prise en compte, sont notés « naturel ».

Par contre, l'assemblage des ADS MUST au plomb est adapté aux spécificités de ce caloporteur et notamment à une densité plus de 10 fois plus élevée que celle du sodium. La référence initiale reste le SFR, mais le nombre de crayons est diminué afin d'obtenir un volume de plomb légèrement supérieur à 50% du volume total de l'assemblage.

Ce rapport est celui généralement pris pour des réacteurs utilisant ce type de caloporteur comme, par exemple, le concept BREST [36]. Ainsi, alors que les assemblages d'ADS MUST

à caloporteur sodium contiennent 271 crayons de combustible, ceux à caloporteur plomb en contiennent seulement 169. Environ 54.5 % du volume d'un assemblage refroidi au plomb est alors occupé par le caloporteur.

Les températures des aciers des structures d'assemblages et des gaines sont également ajustées aux températures de fonctionnement des réacteurs au plomb. Ainsi celle de l'EM10 est fixée à 713 K et les gaines sont à 823 K [31]. La densité utilisée pour le calculs est identique à celle des ADS MUST au sodium.

La composition des caloporteurs correspond à leurs proportions isotopiques naturelles. Le tableau 4.10 contient les températures, les densités et les vitesses d'écoulement des deux caloporteurs. Ces valeurs ont été choisies à partir des caractéristiques de fonctionnement des SFR et de l'EFIT.

Caloporteur	sodium	plomb
Température d'entrée du caloporteur (K)	668	673
Densité du caloporteur ($kg \cdot m^{-3}$)	828	10471
Vitesse d'écoulement du caloporteur ($m \cdot s^{-1}$)	9.8	2

Tableau 4.10: Caractéristiques thermo-hydrauliques des ADS MUST à caloporteur sodium et plomb.

4.5.2 Source de protons et cibles de spallation

Pour les ADS MUST à caloporteur sodium et plomb, la source de proton et les cibles de spallation sont identiques. Ces dernières sont composées d'un eutectique de plomb-bismuth dont la composition est donnée par le tableau 4.11. Elle correspond aux proportions molaires des isotopes de la cible de spallation de MEGAPIE [21] sans les impuretés. La densité de la cible de spallation est fixée à $10.6 g \cdot cm^{-3}$ comme celle de l'expérience MEGAPIE.

Isotopes	Proportion molaire
	Eutectique Pb-Bi
^{209}Bi	0.5527
^{208}Pb	0.2405
^{207}Pb	0.0988
^{206}Pb	0.1077

Tableau 4.11: Proportions molaires des isotopes composant l'eutectique Pb-Bi utilisé comme cible de spallation.

Pour choisir l'énergie des protons, nous avons effectué une étude du nombre de neutrons produits par la réaction de spallation en fonction de l'énergie incidente du proton. Pour cela des simulations d'une cible de spallation en Pb-Bi d'un mètre de longueur et de 10 centimètres de rayon sont réalisées avec le code MCNPX. Ces dimensions sont choisies de manière à maximiser la production de neutrons et de ne pas avoir d'effets liés à des dimensions plus petites de la cible. Un faisceau de protons monodirectionnel est orienté vers la cible.

La figure 4.7 montre le nombre de neutrons produits par la réaction de spallation normalisée par proton source appelé multiplicité, en fonction de l'énergie du proton incident. Nous constatons une augmentation de cette valeur avec l'énergie du proton.

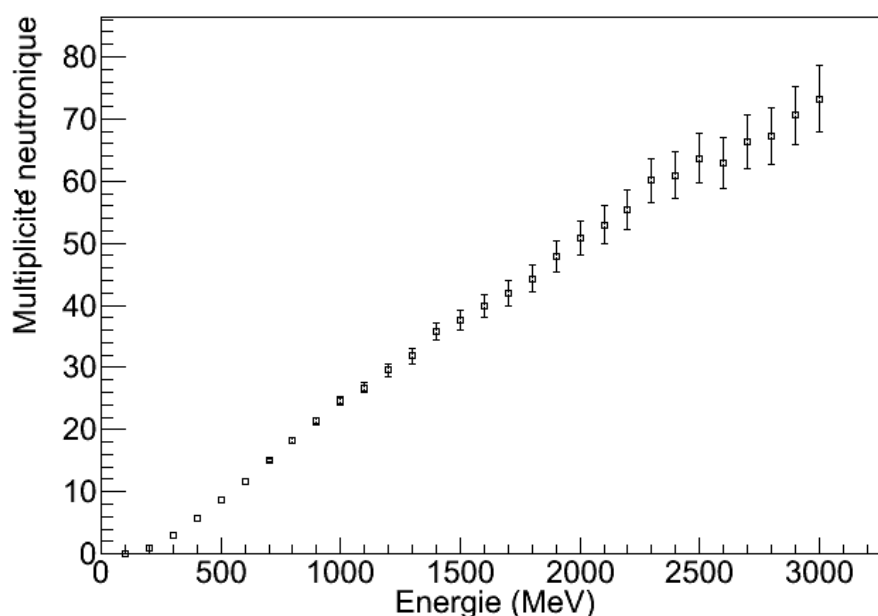


Figure 4.7: Nombre de neutrons créés par spallation divisé par le nombre de protons incidents en fonction de l'énergie de ceux-ci. Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs statistiques calculées par le code MCNPX. La cascade intranucléaire et l'évaporation du phénomène de spallation sont calculées respectivement avec les modèles Bertini et Dresner.

De plus, en étudiant la multiplicité divisée par l'énergie incidente (figure 4.8), nous remarquons une asymptote à partir de 1 GeV. Or, plus l'énergie des protons à atteindre est élevée, plus le coût de fonctionnement de l'accélérateur est important. Donc, une énergie de 1 GeV semble être optimale pour la production de neutrons.

De plus, c'est une grandeur comparable à celle utilisée par d'autres cibles comme celle du concept EFIT dont les protons ont une énergie de 800 MeV.

Pour ces raisons, les concepts d'ADS MUST seront alimentés par un faisceau de protons de 1 GeV.

La figure 4.9 représente le nombre de neutrons émis par spallation provoquée par un proton

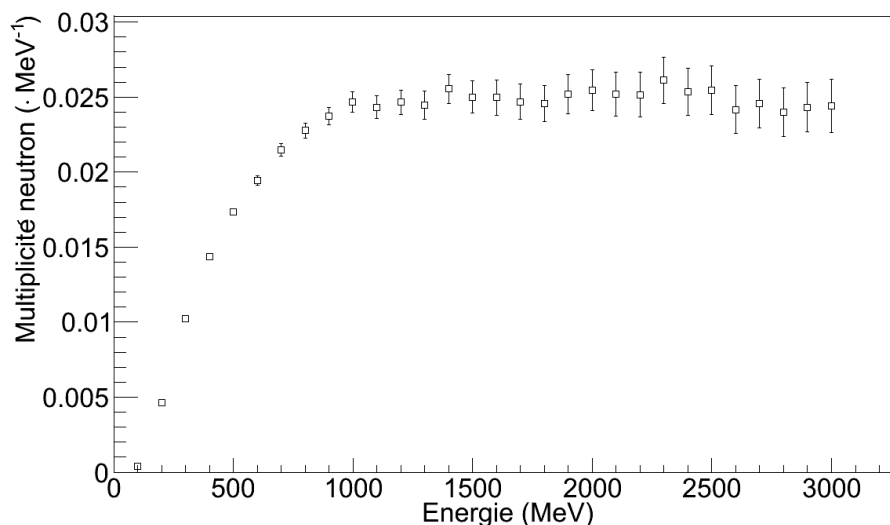


Figure 4.8: Nombre de neutrons créés par spallation divisé par le nombre de protons incidents et par leur énergie en fonction de l'énergie de ceux-ci. Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs statistiques calculées par le code MCNPX. La cascade intranucléaire et l'évaporation du phénomène de spallation sont calculées respectivement avec les modèles Bertini et Dresner.

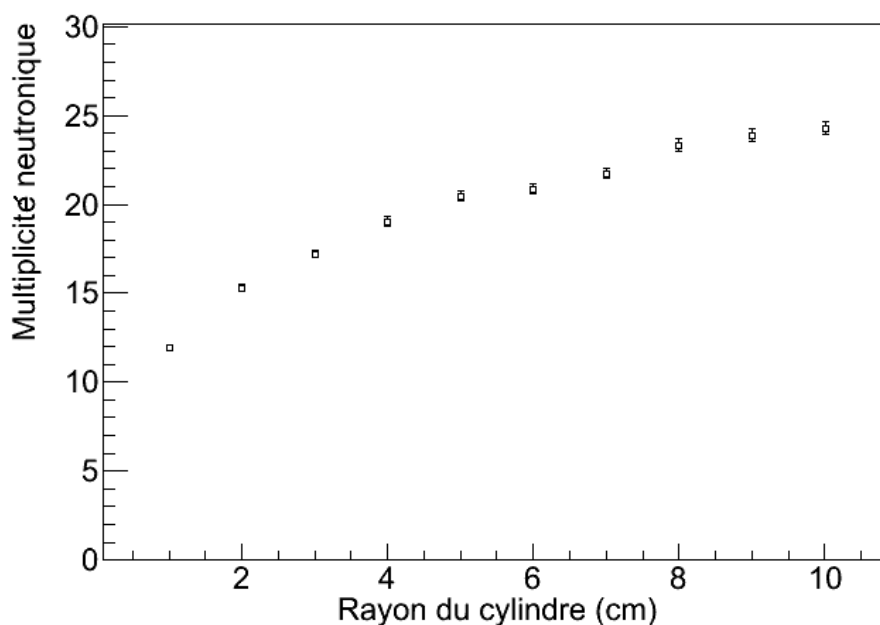


Figure 4.9: Nombre de neutrons créés par spallation en fonction du rayon de la cible. Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs statistiques calculées par le code MCNPX. La cascade intranucléaire et l'évaporation du phénomène de spallation sont calculées respectivement avec les modèles Bertini et Dresner.

de 1 GeV en fonction du rayon de la cible. Pour obtenir ces résultats des simulations d'une cible de Pb-Bi de 1 mètre de longueur sont effectuées avec le programme MCNPX.

La courbe des résultats obtenus montre que le nombre de neutrons produit n'est pas linéaire avec l'augmentation du rayon. Le gain entre deux valeurs successives diminue avec l'élargissement de la cible de spallation. À partir de quatre centimètres de rayon, l'augmentation de la multiplicité est très faible. Nous avons donc choisi d'utiliser une cible de spallation de 8 cm de diamètre comme source de neutrons dans l'ADS MUST.

La hauteur de la cible est définie afin d'avoir la production maximale de protons au centre du cœur. La figure 4.10 est le résultat de la simulation d'une cible de spallation de 50 cm de longueur et de 5 cm de rayon, soumise à un faisceau de protons de 1 GeV. Afin d'obtenir le profil axial de production neutronique par spallation, le cylindre de Pb-Bi est discrétisé par pas de 2 cm. Pour extraire le flux neutronique sortant de chaque portion de cible, une couronne de 0.01 mm d'épaisseur entoure chacune d'entre elles. On suppose l'épaisseur assez faible pour pouvoir négliger les neutrons issus des cylindres adjacents.

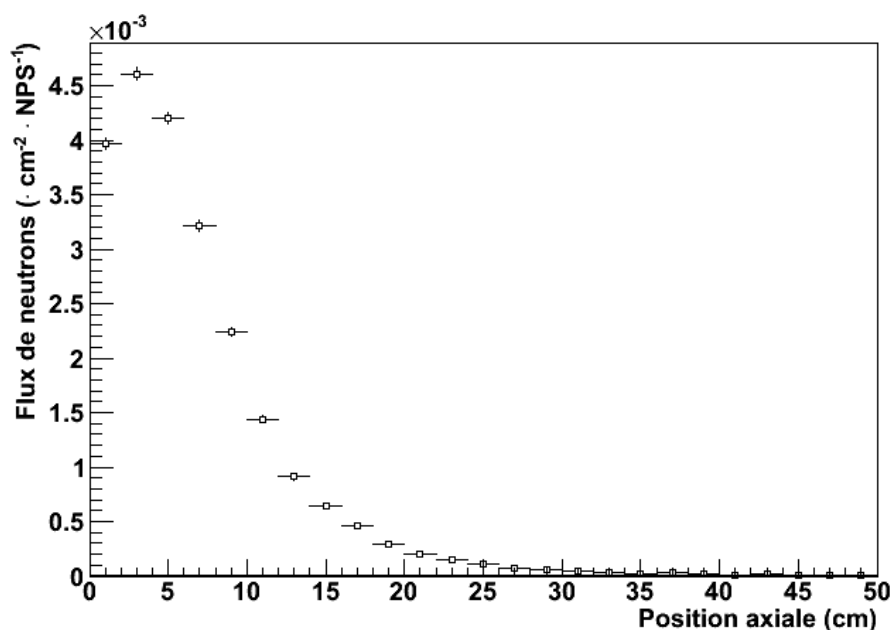


Figure 4.10: Profil axial du flux neutronique créé par spallation normalisé par proton source (NPS). Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs statistiques calculées par le code MCNPX. La cascade intranucléaire et l'évaporation du phénomène de spallation sont calculées respectivement avec les modèles Bertini et Dresner.

Cette figure montre les valeurs du flux de neutrons sortant des différentes parties du cylindre par proton source en fonction de leur position axiale. Nous constatons que le flux le plus intense est situé sur la première vingtaine de centimètres. Pour cette raison, l'eutectique de Pb-Bi de la cible de spallation des ADS MUST est présent à 15 centimètres au-dessus de la mi-hauteur du cœur.

La longueur de la cible de spallation est définie afin d'optimiser l'apport dans le cœur des neutrons produits par la réaction de spallation. La figure 4.11 correspond au nombre de neutrons émis par une cible de spallation de Pb-Bi et de rayon 10 centimètres, en fonction de sa longueur. Nous observons sur ces résultats obtenus avec le code MCNPX, un gain de neutrons négligeable avec l'allongement de la cible au-delà de 50 cm. Pour cette raison, la cible s'étend jusqu'à la base des assemblages et mesure donc 65 centimètres de long.

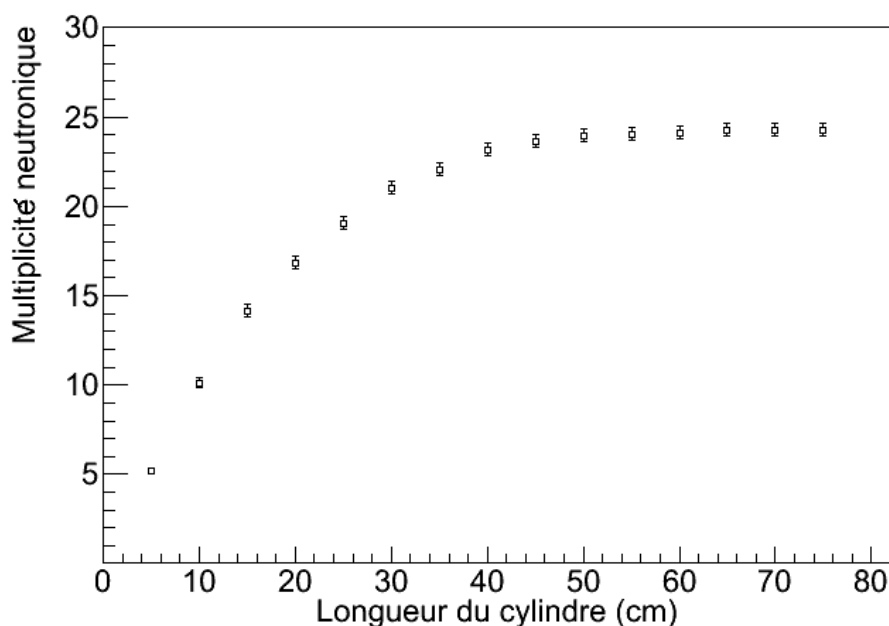


Figure 4.11: Nombre de neutrons créés par spallation en fonction de la longueur de la cible. Les barres d'erreurs correspondent aux erreurs statistiques calculées par le code MCNPX. La cascade intranucléaire et l'évaporation du phénomène de spallation sont calculés respectivement avec les modèles Bertini et Dresner.

La figure 4.12 est le schéma de la cible de spallation utilisée dans les ADS MUST. Elles sont simulées par un tube d'acier au centre d'un assemblage contenant du vide dans la partie haute correspondant au guide des protons et un eutectique de plomb-bismuth au-dessous. Une rangée d'assemblages autour de la cible est laissée vide en prévision de la place prise par le matériel accompagnant la cible de spallation, qui n'est pas pris en compte dans nos études. L'acier simulé pour le conduit de proton est identique à celui de la structure des assemblages (tableau 4.9).

Le dimensionnement des cibles de spallation peut certainement être optimisé dans le cadre d'études de développement plus avancées des ADS MUST. Les dimensions ont été choisies de manière à avoir une production de neutrons et un impact sur le flux neutronique satisfaisant dans le cœur, sans pour autant répondre à des critères industriels méritant des études plus approfondies.

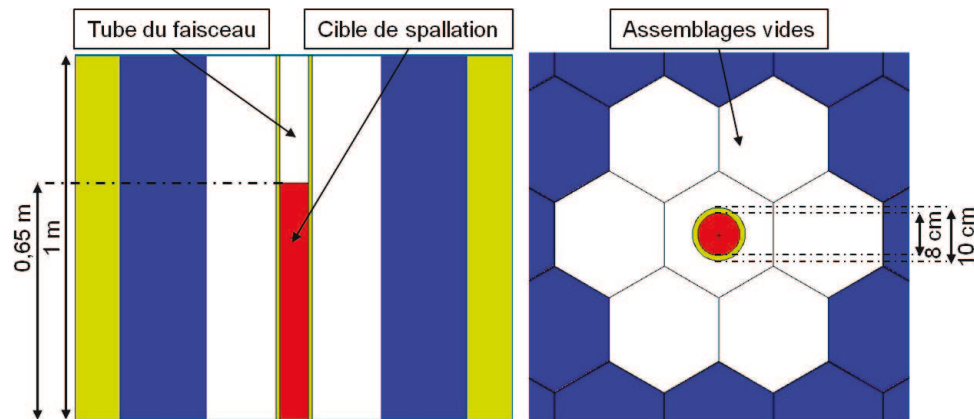
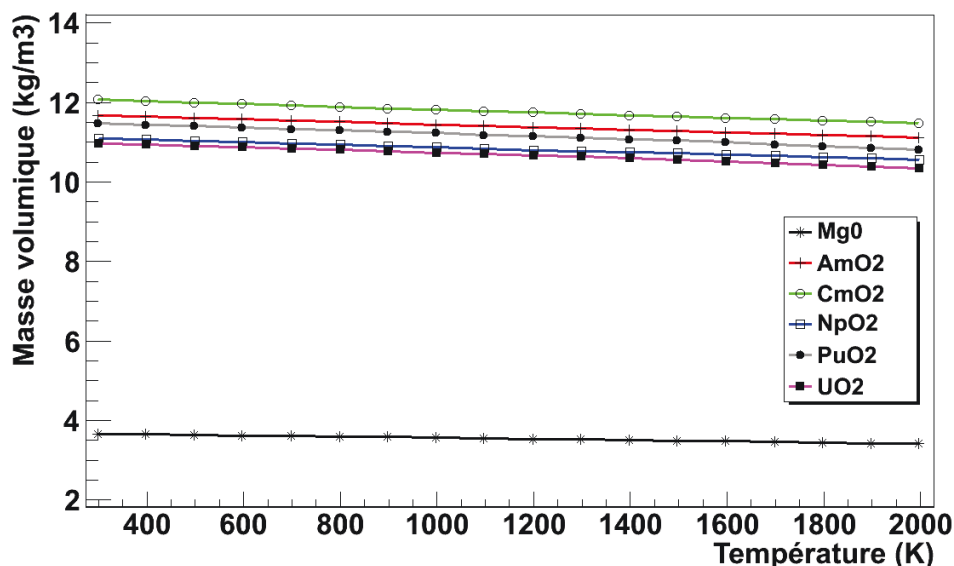


Figure 4.12: Schéma d'une cible de spallation d'un ADS MUST.

4.5.3 Calcul de la densité du combustible

Pour chaque filière simulée, on aura une composition très différente en terme de noyaux lourds et de quantité de matrice inerte. Une méthode générique pour calculer la masse volumique de ce mélange est appliquée à chaque simulation réalisée avec les programmes MURE et MCNPX.

Pour cela, nous utilisons des bases de données contenant la densité des UO_2 [74], PuO_2 [74], NpO_2 [75], AmO_2 [76], CmO_2 [76] et du MgO [77] en fonction de la température. Ces valeurs sont représentées sur la figure 4.13.

Figure 4.13: Masse volumique des UO_2 [74], NpO_2 [75], PuO_2 [74], AmO_2 [76], CmO_2 [76] et MgO [77] en fonction de la température.

Mais, elles ne donnent pas la densité du mélange des différents composants. Pour calculer

la densité théorique du combustible ρ_C , nous appliquons la formule suivante [78] :

$$\rho_C = 0.90 \cdot \frac{A_C}{V_{mC}} \quad (4.2)$$

A_C est la masse molaire du combustible défini par l'expression 4.3 dans laquelle i est soit un oxyde de noyaux lourds (NLO) soit du MgO. N_i est la proportion molaire et A_i est la masse molaire de la molécule considérée (MgO ou NLO).

$$A_C = \sum_i N_i A_i \quad (4.3)$$

V_{mC} est la somme des volumes molaires des différents composants du combustible obtenue avec la formule suivante :

$$V_{mC} = \sum_i \frac{N_i A_i}{\rho_i} \quad (4.4)$$

Dans cette équation, ρ_i est la densité de chacune des molécules i d'oxydes de noyaux lourds ou de MgO.

Dans la pratique, le mélange de la matrice inerte avec les oxydes de noyaux lourds n'est pas parfait, un facteur 0.90 (équation 4.2) est donc appliqué pour prendre en compte cette limite de conception du combustible.

La densité du combustible est recalculée avec cette méthode à chaque simulation en fonction de sa composition.

4.5.4 Dimensionnement du cœur sous-critique

À cette étape, la géométrie des assemblages est connue et le premier vecteur isotopique de noyaux lourds composant le combustible également. Nous allons à présent déterminer la position des cibles de spallation et les limites de la zone de combustible, de manière à obtenir un flux neutronique relativement homogène dans le cœur sous-critique en ayant un nombre d'assemblages de combustible important.

Tout d'abord, nous considérons un ADS à une cible de 1 mètre de haut comme les réacteurs de type SFR [34]. Le rayon de l'ADS est choisi suffisamment grand pour pouvoir négliger le flux neutronique à ses extrémités. Afin d'estimer cette dimension, un calcul est réalisé avec le code MCNPX pour un réacteur ayant un très grand rayon. Nous utilisons pour la composition du combustible le vecteur de noyaux lourds obtenu précédemment (tableaux 4.5, 4.6, 4.7 et 4.8) auquel nous ajoutons du MgO afin d'obtenir un k_{eff} environ égal à 0.97. La densité du combustible est recalculée en fonction de sa composition.

Ensuite l'ADS est simulé avec une cible de spallation vers laquelle est dirigée une source monodirectionnelle de proton de 1 GeV. La réaction de spallation est reproduite par les modèles Bertini et Dresner décrivant respectivement la cascade intranucléaire et l'évaporation. Une discrétisation radiale du système est effectuée pour extraire les valeurs locales du flux neutronique. Les éléments du découpage s'étendent sur toute la hauteur du cœur et permettent ainsi d'obtenir une cartographie du flux neutronique dans l'ADS.

La figure 4.14 est l'exemple de deux résultats obtenus pour des filières où seul l'américium produit par des réacteurs de type SFR est transmuté par des ADS à caloporteur plomb et sodium. Sur ces figures, les valeurs très élevées du flux neutronique dans la cible de spallation ont été coupées afin de mieux visualiser les résultats dans la zone de combustible. Elles montrent que la valeur du flux neutronique est très faible au delà de 2 mètres.

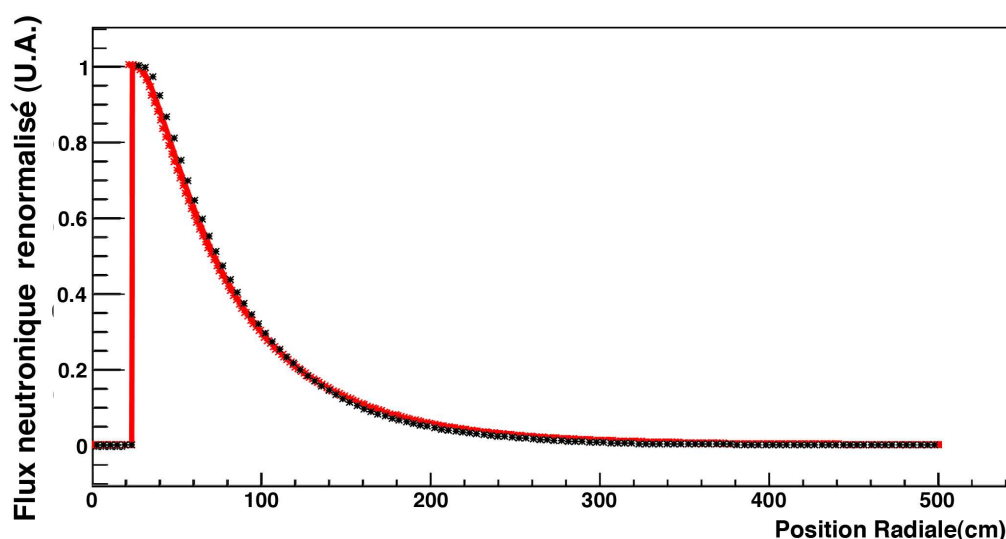


Figure 4.14: Flux neutronique radial d'un ADS de grand rayon, à caloporteur plomb (en rouge) et sodium (en noir) des filières SFR-Pb3-1 et SFR-Na5-1. Le flux dans la zone de spallation est fixé à 0 afin d'observer uniquement le flux dans la zone de combustible.

Puis, le flux neutronique en fonction de la position dans le cœur est calculé (figures 4.15) avec la même méthode pour des ADS utilisant le combustible correspondant à chacune des filières et dont la proportion de matrice inerte permet d'obtenir un coefficient de multiplication proche de 0.97.

Ensuite, deux hypothèses sont faites. La première est de considérer que le flux neutronique radial d'un ADS à une cible est lié principalement à la valeur de son k_{eff} . Cette approximation est relativement bien vérifiée si l'on compare les flux obtenus pour l'ensemble des filières des ADS à caloporteur sodium (figure 4.15) et plomb (figure 4.16).

Deuxièmement, nous supposons que le flux neutronique au sein d'un ADS MUST à trois cibles est proche de l'addition de trois flux neutroniques issus d'un ADS à une cible. Donc,

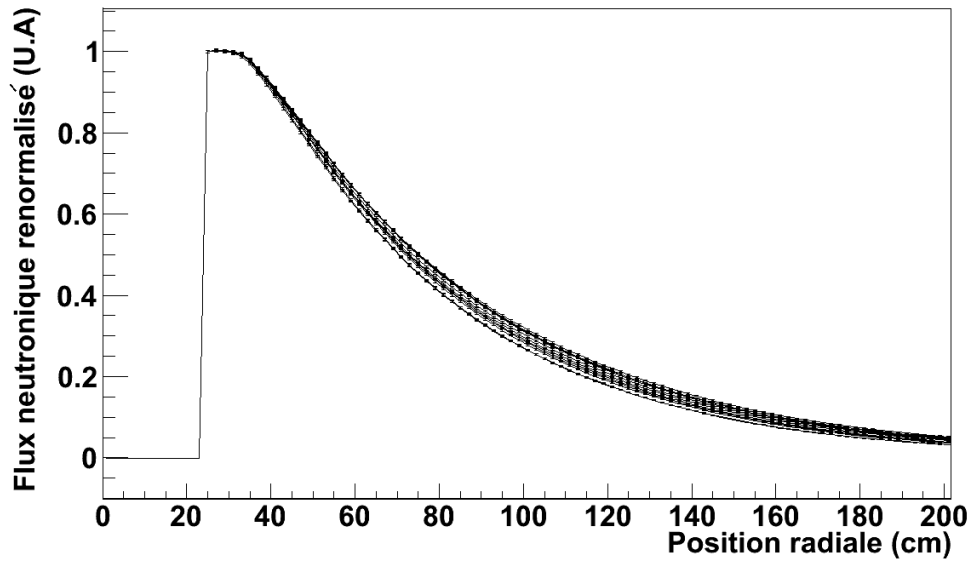


Figure 4.15: Flux neutronique radial renormalisé d'un ADS de grand rayon à caloporteur sodium pour l'ensemble des filières étudiées dont les vecteurs isotopiques de noyaux lourds sont répertoriés dans les tableaux 4.5 et 4.6. Les valeurs sont données en unité arbitraire (U.A).

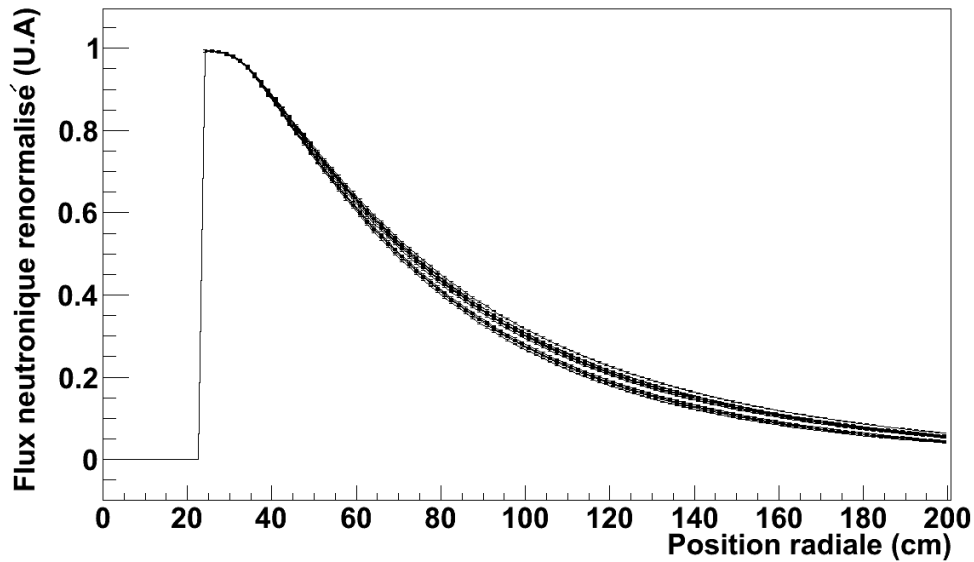


Figure 4.16: Flux neutronique radial renormalisé d'un ADS de grand rayon à caloporteur plomb pour l'ensemble des filières étudiées dont les vecteurs isotopiques de noyaux lourds sont répertoriés dans les tableaux 4.7 et 4.8. Les valeurs sont données en unité arbitraire (U.A).

nous sommes trois flux neutroniques issus d'un ADS radialement quasi-infini de manière à correspondre avec la position des 3 cibles de spallation de l'ADS MUST dont nous cherchons à estimer le flux.

Un programme place les cibles de manière symétrique afin qu'elle forme un triangle équilatéral. Leur distance d_1 par rapport au centre correspond à un certain nombre de côtés d'assemblage. La limite de la zone de combustible est définie par la distance d_2 indiquée sur le schéma 4.17. La forme des assemblages étant fixée, le pas entre deux configurations successives est d'un côté de l'hexagone.

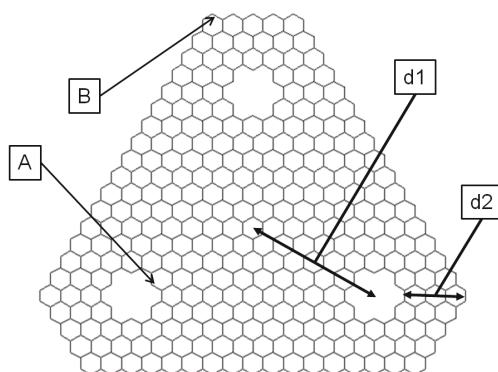


Figure 4.17: Schéma explicatif pour la détermination des dimensions du cœur.

Le programme somme alors les contributions du flux neutronique radial des trois cibles afin d'estimer le flux d'un ADS MUST correspondant. Puis nous définissons trois valeurs de flux neutronique afin de pouvoir effectuer le choix de la géométrie finale.

La première est la valeur maximale du flux d'un ADS à une cible avec laquelle la cartographie du flux neutronique a été effectuée. Elle est notée Φ_1 et correspond à la plus grande valeur extraite d'un élément du quadrillage situé dans la zone de combustible. Cette position se trouve près des cibles de spallation et peut, par exemple, correspondre au point A sur le schéma 4.17.

La deuxième est la valeur moyenne des contributions des trois ADS à une cible dans la zone de combustible (Φ_2). C'est-à-dire, la valeur du flux neutronique dans le cœur de la configuration étudiée.

La troisième, Φ_3 est la valeur minimale du flux neutronique située au bord proche des cibles dans la géométrie testée. Sur le schéma 4.17, cette position correspond par exemple à la position du point B.

Alors trois critères sont appliqués afin de sélectionner la disposition finale du cœur. Nous souhaitons un rapport entre le flux neutronique Φ_2 de la configuration finale et le flux maximal de l'ADS à une cible Φ_1 , supérieur ou égal à 0.55. De même, Φ_3 divisé par le flux maximal de l'ADS à une cible doit être supérieur à 0.3. Enfin la dernière condition est de maximiser le nombre d'assemblages du cœur afin d'obtenir une puissance la plus élevée possible.

Les critères de dimensionnement sont donc :

- $\Gamma_1 = \frac{\Phi_2}{\Phi_1} \geq 0.55$
- $\Gamma_2 = \frac{\Phi_3}{\Phi_1} \geq 0.3$

- maximiser le nombre d'assemblages.

Ils ont été choisis pour trouver un compromis entre l'obtention d'un flux neutronique le plus homogène possible et avoir un nombre suffisant d'assemblages de combustible. Ces critères, relativement subjectifs, sont appliqués à toutes les filières étudiées.

Un grand nombre de configurations d'écartements des cibles et de limites de la zone de combustible est testé. Le programme détermine dans chaque cas Γ_1 , Γ_2 et le nombre d'assemblages de la zone de combustible.

Pour un caloporteur donné, il existe une configuration de l'ADS à 3 cibles, pour laquelle une majorité des combustibles permet de passer les conditions précédentes. Pour les autres vecteurs isotopiques, toutes les conditions ne sont pas remplies avec cet agencement mais les valeurs de Γ_1 et Γ_2 sont proches de celles souhaitées. Donc, pour faciliter la suite du protocole, un unique dimensionnement est utilisé pour chaque caloporteur. Le tableau 4.12 résume les résultats obtenus pour ceux-ci.

Code de l'ADS MUST	Γ_1	Γ_2	N_{Ass}	Code de l'ADS MUST	Γ_1	Γ_2	N_{Ass}
REP-Na5-1	0.48	0.26	225	REP-Pb3-1	0.54	0.25	274
REP-Na5-3	0.57	0.33	225	REP-Pb3-3	0.59	0.34	274
REP-Na7-1	0.58	0.34	225	REP-Pb5-1	0.56	0.35	274
REP-Na7-3	0.56	0.33	225	REP-Pb5-3	0.60	0.41	274
SFR-Na5-1	0.55	0.33	225	SFR-Pb3-1	0.59	0.33	274
SFR-Na5-3	0.55	0.33	225	SFR-Pb3-3	0.60	0.37	274
SFR-Na7-1	0.57	0.35	225	SFR-Pb5-1	0.59	0.33	274
SFR-Na7-3	0.53	0.33	225	SFR-Pb5-3	0.62	0.35	274

Tableau 4.12: Coefficients de dimensionnement pour la configuration finale des ADS MUST à caloporteur sodium à gauche et plomb à droite. N_{Ass} est le nombre d'assemblages dans la zone combustible.

La similitude des configurations pour un caloporteur s'explique notamment par la taille du pas utilisé pour définir les différentes dispositions. Ainsi, les distances finales entre le centre du cœur et les cibles de spallation sont de 10 côtés d'assemblage pour les ADS MUST au sodium et 12 pour ceux au plomb. Et il y a 3 assemblages entre une cible et un bord adjacent.

4.5.5 Gestion du k_{eff} au cours de l'irradiation

Évolution de la réactivité

Au début de ce travail de thèse, il était admis que dans un cœur sous-critique soumis à une irradiation, la réactivité était supposée décroître. La question était alors de chercher à compenser la chute de réactivité due à la consommation des noyaux fissiles.

Or, il est rapidement apparu que l'évolution d'un vecteur isotopique dans lequel le plutonium est à l'équilibre et contenant une grande quantité d'actinides mineurs conduisait dans le cas d'un ADS MUST à une augmentation de la réactivité pouvant dans certains cas rendre le système sur-critique.

La figure 4.18 est une illustration de ce phénomène. Les courbes représentent l'évolution du facteur de multiplication calculée avec le programme MURE, au cours d'une irradiation de 5 ans dans un ADS MUST transmutant tous les actinides mineurs ou seulement l'américium issus de REP. Les réacteurs commencent leur cycle avec le premier vecteur isotopique de noyaux lourds correspondant à leur filière (tableau 4.5) auquel est ajouté une matrice inerte de MgO afin d'obtenir un coefficient de multiplication initial d'environ 0.97.

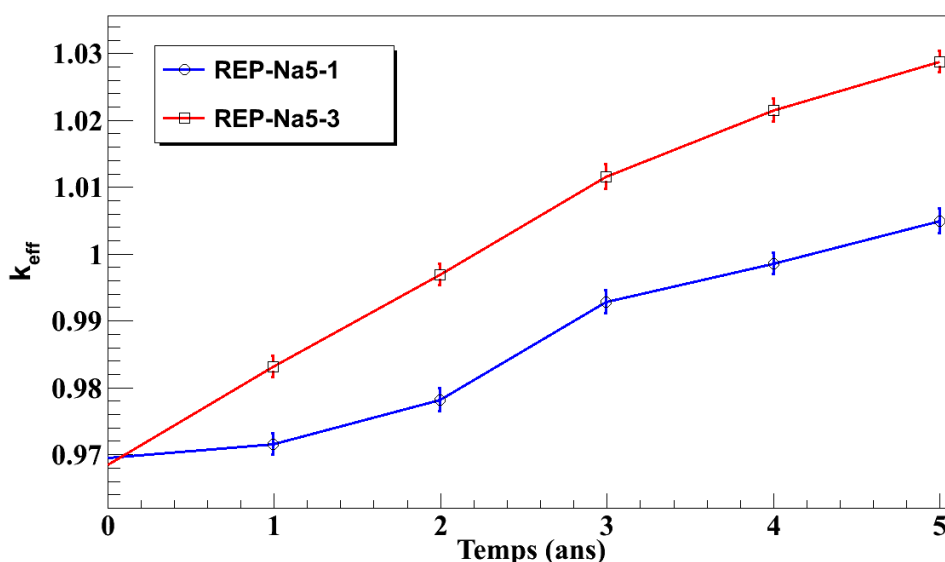


Figure 4.18: Exemple d'évolution du k_{eff} durant une irradiation de 5 ans, sans contrôle du cœur, pour les filières REP-Na5-1 et REP-Na5-3. La courbe bleue avec les marqueurs en forme de cercle correspond au réacteur transmutant seulement l'américium et en rouge avec les marqueurs carrés le système transmutant l'ensemble des actinides mineurs. Les barres d'erreur sont les erreurs statistiques calculées par le code MCNPX.

Pour comprendre l'augmentation de la réactivité, nous allons étudier les deux exemples cor-

respondant à la figure 4.18. Des simulations d'évolution du combustible de l'ensemble du cœur sont effectuées avec le code MURE. L'objectif est de comparer l'influence des différents noyaux sur le coefficient de multiplication en début et en fin d'irradiation.

Pour cela, nous allons chercher à calculer le gain (production ou perte) de neutrons en début et en fin d'irradiation induit par chaque noyau. Ce gain est noté G_i et est défini par la différence entre le nombre de neutrons générés par chaque isotope i interagissant dans le cœur (N_{gi}) et le nombre de neutrons absorbés (N_{ai}) par unité de temps (équation 4.5).

$$G_i = N_{gi} - N_{ai} \quad (4.5)$$

Le signe de G_i indique ainsi l'influence du noyau sur le nombre de neutrons présents dans le cœur. Si sa valeur est positive pour un isotope, cela signifie qu'il crée plus de neutrons qu'il n'en consomme. C'est par exemple le cas des noyaux désignés de « fissiles ». Inversement si G_i est négatif, l'isotope absorbe plus de neutrons qu'il n'en produit.

N_{gi} est calculé de la manière suivante :

$$N_{gi} = N_i(v_i < \sigma_{fi} > + 2 < \sigma_{(n,2n)i} >)(1 - P_e) \quad (4.6)$$

Dans cette équation, $< \sigma_{fi} >$ et $< \sigma_{(n,2n)i} >$ sont les sections efficaces moyennées sur le flux neutronique en énergie (équation 3.12) de fission et de réaction (n,2n) de l'isotope i . Le nombre moyen de neutrons émis par fission de l'isotope i est noté v_i et N_i est le nombre des noyaux de i . P_e est la probabilité qu'un neutron s'échappe du système, donc $1 - P_e$ est la probabilité de non-fuite.

N_{ai} est le taux d'absorption neutronique de l'isotope i et est défini de la manière suivante :

$$N_{ai} = N_i(< \sigma_{fi} > + < \sigma_{ci} > + < \sigma_{(n,2n)i} >) \quad (4.7)$$

$< \sigma_{ci} >$ est la section efficace de capture moyennée sur le flux neutronique en énergie.

La probabilité de fuite neutronique du cœur est définie par l'expression 4.8 dans laquelle N_c , N_f et $N_{n,xn}$ sont les nombres de neutrons absorbés par capture radiative, par fission et par réaction (n,xn), et N_e est le nombre de neutrons qui s'échappent du système.

$$P_e = \frac{N_e}{N_e + N_c + N_f + N_{n,xn}} \quad (4.8)$$

Pour comprendre l'augmentation du k_{eff} et calculer G_i pour l'ensemble des isotopes des noyaux lourds au début et à la fin de l'irradiation, nous effectuons donc une simulation de l'évolution du combustible de l'ADS avec le programme MURE. À chaque pas en temps, ce

programme réalise un calcul avec le code MCNPX qui écrit un fichier de sortie contenant, entre autres, le nombre de neutrons ayant été diffusés hors du système (N_e) et ceux ayant été absorbés par capture radiative (N_c), par fission (N_f) ou par réaction n,xn ($N_{n,xn}$). Nous pouvons en déduire la probabilité qu'un neutron s'échappe (P_e) avec l'équation 4.8.

Afin d'obtenir les taux de réaction et d'absorption pour l'ensemble des noyaux, le flux de neutrons ϕ et les sections efficaces $\langle \sigma \rangle$ sont extraits des résultats des calculs réalisés par le programme MURE. Nous effectuons également de nouveaux calculs avec le code MCNPX afin de déterminer le nombre moyen de neutrons émis par la fission de chaque isotope.

Nous calculons alors pour un isotope le nombre de neutrons créés et absorbés par seconde, à partir des équations 4.6 et 4.7. Puis, nous déterminons le gain de neutrons par seconde avec l'expression 4.5. De manière à manipuler des chiffres de l'ordre de l'unité, nous exprimerons le gain par 10^{-18} secondes.

Les figures 4.19 et 4.20 sont les résultats obtenus pour les deux exemples étudiés. Pour chacun des isotopes, les valeurs en bleu foncé (à gauche) et en bleu clair (au centre) sont respectivement les gains de neutrons en début G_{Di} et fin d'irradiation G_{Fi} . La valeur rouge est leur différence ($G_{Fi} - G_{Di}$).

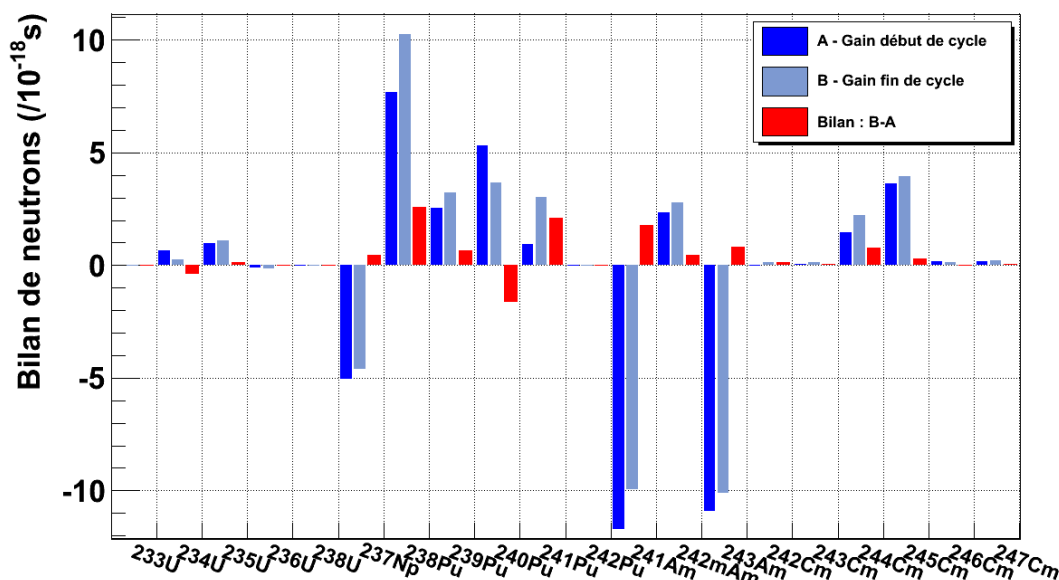


Figure 4.19: Gain neutronique en début G_{Di} (en bleu foncé à gauche) et fin G_{Fi} (en bleu clair au centre) de cycle d'irradiation pour les principaux isotopes de noyaux lourds. La valeur en rouge (à droite) est leur différence. Ces résultats sont obtenus pour la filière REP-Na5-3.

L'histogramme 4.19 montre distinctement des gains de neutrons négatifs pour les ^{237}Np , ^{241}Am et ^{243}Am . Il est d'environ 10 neutrons par 10^{-18} secondes pour les isotopes de l'améri-

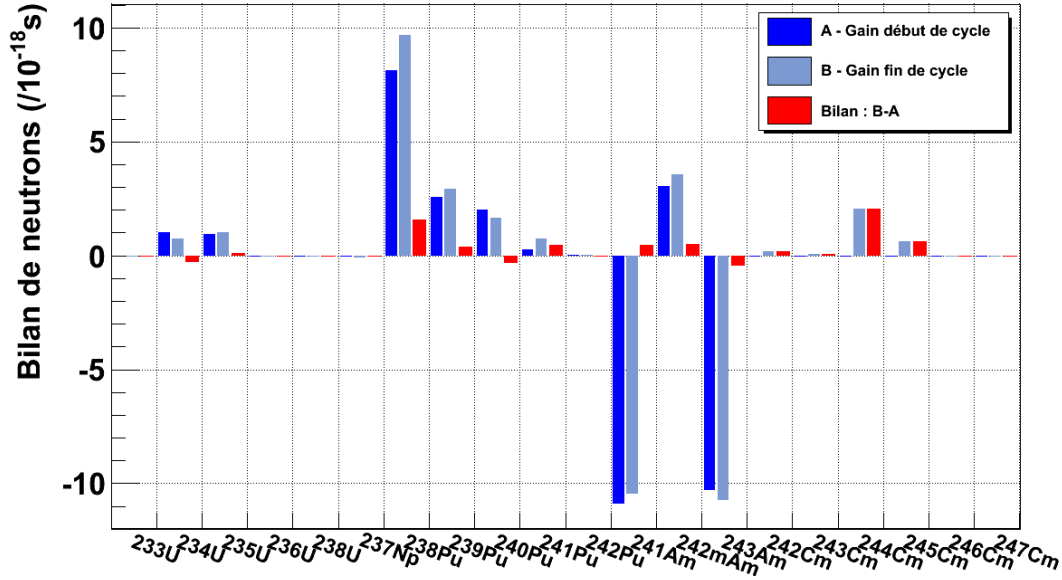


Figure 4.20: Gain neutronique en début G_{Di} (en bleu foncé à gauche) et fin G_{Fi} (en bleu clair au centre) de cycle d'irradiation pour les principaux isotopes de noyaux lourds. La valeur en rouge (à droite) est leur différence. Ces résultats sont obtenus pour la filière REP-Na5-1.

cium et de près de 5 pour le ²³⁷Np.

Inversement, les isotopes de plutonium et de curium produisent plus de neutrons qu'ils en absorbent. Le ²³⁸Pu a des valeurs de G supérieures à 7 neutrons par 10^{-18} seconde. Le ²⁴⁰Pu et le ²⁴⁵Cm ont des gains de neutrons de l'ordre de 4 à 5. Puis les ²³⁹Pu et ²⁴¹Pu ont des résultats plus faibles.

En terme de bilan, les ²³⁷Np, ²⁴¹Am et ²⁴³Am ont des différences de gain positives, ils absorbent donc moins de neutrons en fin de cycle qu'au début. Par conséquent leur évolution tend à faire augmenter la valeur du coefficient de multiplication. Cela s'explique notamment par la diminution de leur quantité au cours de l'irradiation.

Or, ils sont transmutés soit en produits de fission qui ont la caractéristique de provoquer uniquement des captures neutroniques, soit en plutonium. Les isotopes de plutonium créent plus de neutrons en fin de cycle, hormis le ²⁴⁰Pu. Les ²³⁸Pu et ²⁴¹Pu sont ceux ayant des apports de neutrons supplémentaires les plus significatifs. La formation de plutonium et de curium dans le combustible au dépend des ²³⁷Np, ²⁴¹Am et ²⁴³Am, compense les captures neutroniques induites par la création des produits de fission et tend à augmenter le coefficient de multiplication.

La figure 4.20 illustre également le gain négatif sur le nombre de neutrons de l'américium et inversement l'apport de neutrons induits par le plutonium. Par contre, la quantité de neptunium étant négligeable, son influence sur le bilan neutronique est très faible.

La différence de gain neutronique en début et fin de cycle est à nouveau positive pour

^{241}Am mais négative pour ^{243}Am . Les valeurs de ces bilans sont relativement faibles.

Par contre, l'apport en neutrons lié au plutonium est plus élevé en fin de cycle qu'en début, notamment celui du ^{238}Pu . Cependant, le curium créé en cours de cycle a une contribution plus importante. C'est principalement le cas du ^{244}Cm dont le bilan entre le début et la fin d'irradiation est le plus élevé. L'augmentation du k_{eff} est donc pour cet exemple lié à la création de plutonium et surtout de curium.

La comparaison des histogrammes 4.19 et 4.20 met en évidence un phénomène relativement similaire pour les deux stratégies de transmutation. Il y a tout de même quelques différences liées à la composition du initial combustible.

Dans le combustible d'une filière où seul l'américium est transmuté, la quantité de neptunium et de curium est négligeable en début de cycle. Pour cette raison, le neptunium a une influence très limitée sur le bilan neutronique et a une participation négligeable à la formation de plutonium. Au contraire, dans cette filière, le curium a un impact bien plus élevé en fin de cycle.

Maintien de la sous-criticité

Afin d'anticiper ce phénomène d'augmentation du coefficient de multiplication, deux approches ont été étudiées. La première consiste à ajouter au système des assemblages de contrôle afin de conserver sa sous-criticité et de stabiliser le k_{eff} autour de 0.97. Cette technique est utilisée pour piloter les réacteurs critiques lors de faibles variations de réactivité. Mais dans le cas des ADS MUST, elle demande une insertion partielle des barres de commande durant une durée importante de l'irradiation. Donc si cette option est choisie, il est indispensable de s'assurer du bon comportement des assemblages de contrôle et de l'ensemble du réacteur durant toute l'irradiation.

La deuxième approche consiste à démarrer l'irradiation avec un coefficient de multiplication plus faible, de manière à assurer la sous-criticité du système à tout moment de l'irradiation.

L'augmentation du coefficient de multiplication est très dépendante de la composition du combustible. Or à cette étape, le vecteur isotopique de noyaux lourds à l'équilibre est très éloigné de la composition finale car il n'a pas été obtenu avec des paramètres de flux neutronique et de sections efficaces précis.

Nous devons donc faire une hypothèse sur le potentiel d'anti-réactivité des assemblage de contrôle ou sur la valeur de départ du k_{eff} d'un ADS sans assemblage de contrôle. Nous présumons que la variation du coefficient de multiplication durant l'irradiation du combustible à l'équilibre final est de l'ordre de 2.5 %.

Nous supposons donc pour des réacteurs sans assemblages de contrôle qu'un démarrage avec un k_{eff} d'environ 0.95 est suffisant pour conserver la sous-criticité du système.

Pour les ADS MUST munis d'assemblages de contrôle, l'insertion complète des assemblages de contrôle en cœur doit faire diminuer le coefficient de multiplication d'au moins 2.5 % avec un combustible composé du premier vecteur à l'équilibre mélangé à une matrice inerte. Nous supposons que l'anti-réactivité apportée est suffisante pour conserver un k_{eff} proche de 0.97 au cours de l'irradiation dans les conditions finales du dimensionnement.

Ces hypothèses devront impérativement être vérifiées avec le calcul d'évolution des ADS MUST des différentes filières à l'équilibre. S'il s'avère que le potentiel d'anti-réactivité est insuffisant, le dimensionnement doit être revu avec plus d'assemblages de contrôle ou un k_{eff} de début de cycle inférieur.

Cependant cette valeur de 2.5 % a fait l'objet de plusieurs ajustements au cours du travail de mise au point du protocole de dimensionnement. Il est donc dès à présent acquis que l'hypothèse choisie sera vérifiée.

Dans un premier temps, nous allons ajouter des assemblages de contrôle aux réacteurs. Puis, dans les étapes suivantes, nous étudierons des exemples d'ADS MUST démarrant avec un k_{eff} proche de 0.95.

Ayant étudié l'approche de ces derniers tardivement, seules les filières avec des ADS MUST à caloporteur sodium et un cycle d'irradiation de 5 ans seront abordées pour les systèmes sans assemblage de contrôle. Mais les résultats obtenus pour ces filières permettent d'estimer leur potentiel et de les comparer aux filières composées d'ADS munis d'assemblages de contrôle.

Assemblage de contrôle

Les assemblages de contrôle utilisés sont ceux étudiés pour les SFR [79]. Ils sont composés de barres de contrôle contenant du carbure de bore (B_4C) dont l'enrichissement en ^{10}B est de 90 % et leur densité fixée à 1.8 g.cm^{-2} [80]. Le fort enrichissement permet une diminution du nombre d'assemblages de contrôle, mais des études ultérieures devront évaluer la durée de vie de ces barres de contrôle sous irradiation. Par ailleurs, d'autres procédés permettent d'atteindre des valeurs de densité supérieures, ce qui laisse une marge sur le dimensionnement des barres de contrôle [80].

Pour les deux caloporteurs étudiés, les assemblages contiennent 37 barres de contrôle. Par contre, leurs dispositions diffèrent suivant le type de système. Pour les concepts au sodium, elles sont rassemblées dans un hexagone plus petit comme le montre la figure 4.21. Dans les ADS à caloporteur plomb, elles sont dispersées uniformément dans l'assemblage afin de ne pas avoir un écartement entre les barres de contrôle inférieur à celui des crayons dans les assemblages de combustible.

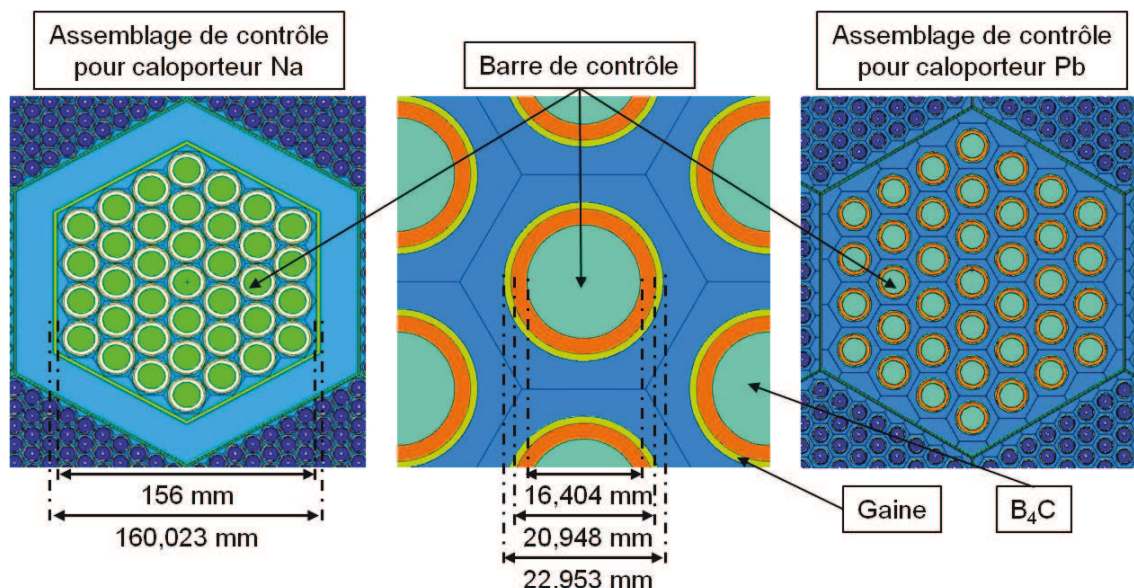


Figure 4.21: Schéma des assemblages de contrôle pour les ADS MUST à caloporteur sodium à gauche et à caloporteur plomb à droite. Schéma des barres de contrôle au centre.

L'ajout des assemblages de contrôle dépend de la géométrie du réacteur. Étant donnée la symétrie des ADS MUST à trois cibles, le nombre de ses assemblages est un multiple de 3.

Pour déterminer le nombre d'assemblages de contrôle par ADS MUST, des calculs sont effectués avec le code MCNPX. Pour chaque configuration, les assemblages sont placés manuellement dans le cœur de manière symétrique. Puis, deux coefficients de multiplication sont calculés avec les assemblages de contrôle entièrement insérés dans le cœur et complètement sortis. Le rapport des k_{eff} permettant une baisse supérieure à 2.5 % et maximisant le nombre d'assemblages combustible est conservé.

On obtient par exemple une variation de 2.6 % du k_{eff} , pour les filières transmutant l'ensemble des actinides mineurs issus de REP dans des ADS MUST à caloporteur sodium contenant 12 assemblages de contrôle. Pour une filière équivalente mais avec des ADS refroidis au plomb avec 9 assemblages de contrôle l'anti-réactivité est de 3.1 %.

Le nombre d'assemblages de contrôle de la configuration finale des ADS MUST à caloporteur sodium est de 12 assemblages de contrôle et de 9 pour ceux refroidis au plomb.

4.5.6 Ajustement de la matrice inerte

Lors des étapes précédentes, nous avons réalisé un calcul de mise à l'équilibre à partir d'un jeu de sections efficaces à 500 keV et un flux de $10^{15} n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$. Les vecteurs isotopiques de noyaux lourds ont ainsi été déterminés pour chacune des filières étudiées (tableaux 4.5, 4.6, 4.7 et 4.8). Nous leur ajoutons une matrice inerte de MgO afin d'obtenir un système ayant un k_{eff}

proche de 0.97. Ces calculs sont effectués dans un premier temps uniquement avec les ADS munis d'assemblages de contrôle. La différenciation des réacteurs avec et sans assemblage de contrôle sera faite lors du calcul du deuxième combustible à l'équilibre.

Des simulations du cœur sont effectuées avec le programme MCNPX de manière à calculer le coefficient de multiplication pour des combustibles composés de différentes proportions de MgO. La densité du combustible est déterminée pour chaque cas avec la méthode expliquée dans la partie 4.5.3.

Le tableau 4.13 récapitule, pour chacune des filières, le nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds.

Code de l'ADS MUST	N_{MgO} (mol)	Code de l'ADS MUST	N_{MgO} (mol)
REP-Na5-1	1.34	REP-Pb3-1	0.54
REP-Na5-3	1.76	REP-Pb3-3	0.92
REP-Na7-1	1.39	REP-Pb5-1	0.58
REP-Na7-3	1.80	REP-Pb5-3	1.00
SFR-Na5-1	1.84	SFR-Pb3-1	0.98
SFR-Na5-3	1.90	SFR-Pb3-3	1.02
SFR-Na7-1	1.85	SFR-Pb5-1	1.03
SFR-Na7-3	1.92	SFR-Pb5-3	1.10

Tableau 4.13: Nombre de mole de MgO (N_{MgO}) pour une mole de noyaux lourds dans le premier combustible des ADS MUST à caloporteur sodium à gauche et refroidis au plomb à droite.

Nous constatons un écart conséquent entre les valeurs obtenues avec les filières dont l'ADS est à caloporteur sodium et celles obtenues avec les réacteurs refroidis par du plomb. Les premiers contiennent des combustibles composés de 1.34 à 1.92 mole de matrice inerte par mole de noyaux lourds, alors que les résultats des seconds sont compris entre 0.54 et 1.10.

De plus, pour les filières composées de réacteurs sous-critiques ayant une durée d'irradiation de 5 ans et dont la seule différence est le caloporteur, les vecteurs isotopiques de noyaux lourds sont identiques. En effet, l'ensemble des paramètres utilisés pour calculer ces derniers ne prennent pas en compte les caractéristiques de l'ADS (voir partie 4.4). À nouveau, les combustibles de ces filières contiennent une quantité plus importante de MgO pour les filières dont les réacteurs sous-critiques sont refroidis au sodium que dans ceux à caloporteur plomb.

Cette différence s'explique en étudiant les taux de fission et de capture dans les deux types de système. Pour cela nous pouvons réaliser un calcul avec le code MCNPX afin d'extraire ces

grandeurs et de les comparer. Les figures 4.22 et 4.23 représentent respectivement des exemples de taux de fission et de capture par particule source pour les filières REP-Na5-3 et REP-Pb5-3 avec des combustibles sans matrice inerte. Nous observons pour l'ADS à caloporteur sodium des valeurs légèrement supérieures pour la fission que celles du réacteur refroidi au plomb, surtout pour une énergie incidente de plus de 1 MeV. Les taux de capture sont par contre un peu plus faibles pour le réacteur à caloporteur sodium sur l'ensemble du spectre. L'ADS MUST à caloporteur sodium, tel que nous l'avons dimensionné, produit donc plus de fissions par neutron, et par conséquent, a besoin d'être plus dilué dans la matrice inerte afin de diminuer la valeur de son coefficient de multiplication.

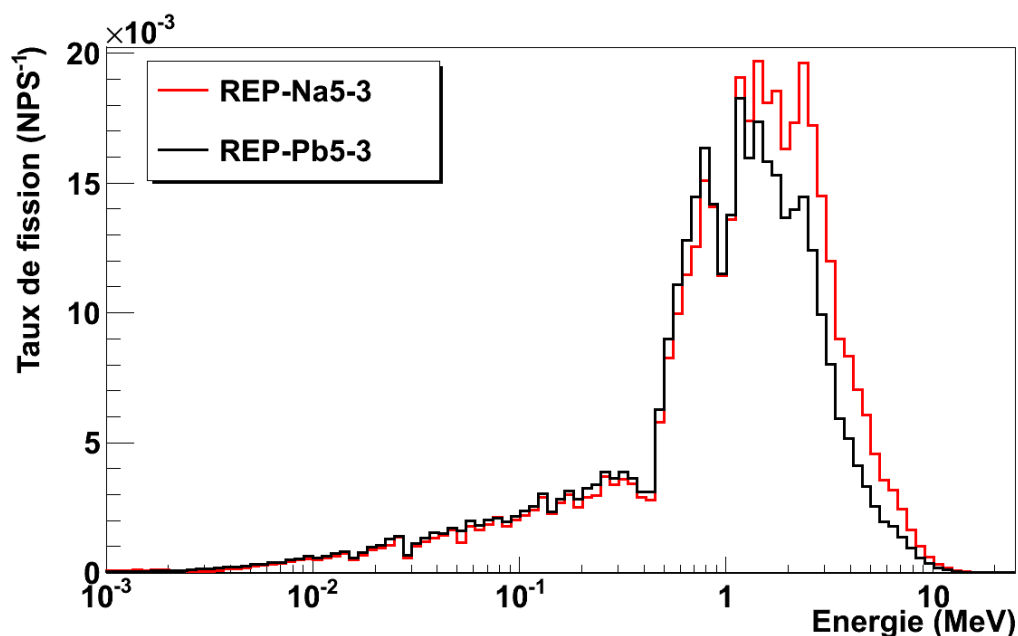


Figure 4.22: Taux de fission par particule source en fonction de l'énergie du neutron incident pour les filières REP-Na5-3 et REP-Pb5-3 avec des combustibles sans matrice inerte.

Nous pouvons également observer une corrélation entre la stratégie de transmutation et la proportion de matrice inerte. En effet, pour des filières différenciées uniquement par ce paramètre, la quantité de MgO est supérieure si l'ensemble des actinides sont transmutés.

Cet écart s'explique par les différences de composition des vecteurs isotopiques à l'équilibre (tableaux 4.5, 4.6, 4.7 et 4.8). Les filières cherchant à transmuter tous les actinides mineurs ont beaucoup moins d'américium (de l'ordre de 50 % par mole de noyaux lourds) que les filières ne transmutant que l'Am (plus de 70 % par mole de noyaux lourds). Or, nous avons vu (figure 4.19) que cet élément est le principal contributeur aux captures neutroniques dans le type de combustible utilisé dans les ADS MUST. Le déficit d'américium tend donc à augmenter la réactivité, il y a par conséquent besoin de plus de MgO pour obtenir un k_{eff} de 0.97.

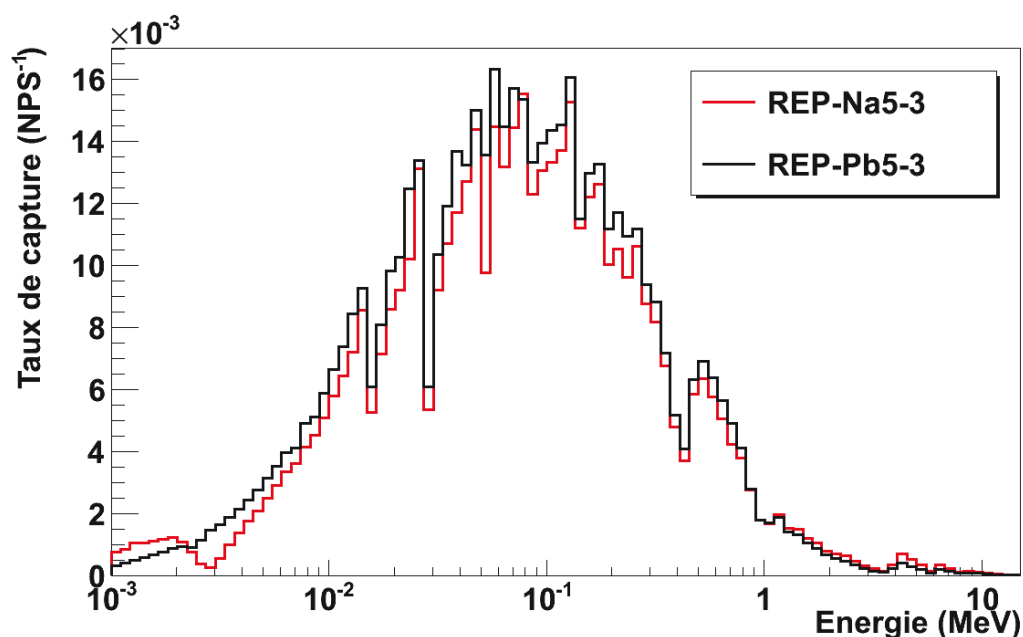


Figure 4.23: Taux de capture par particule source en fonction de l'énergie du neutron incident pour les filières REP-Na5-3 et REP-Pb5-3 avec des combustibles sans matrice inerte.

4.5.7 Configurations des ADS MUST à caloporteur sodium et plomb

À la fin de cette étape les dimensions et configurations des cœurs des deux concepts sont définies. Les schémas 4.24 et 4.25 illustrent les ADS MUST obtenus, et les principales caractéristiques sont recensées dans le tableau 4.14.

Pour les filières utilisant des ADS MUST sans assemblage de contrôle, nous remplaçons seulement ces derniers par des assemblages de combustible. La suite de cette méthode a pour but d'optimiser le combustible et de déterminer la puissance du cœur.

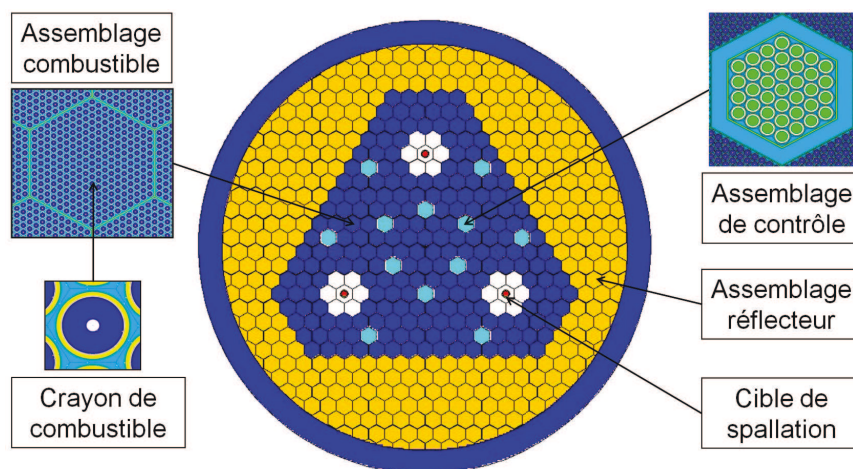


Figure 4.24: Schéma d'un ADS MUST à caloporteur sodium.

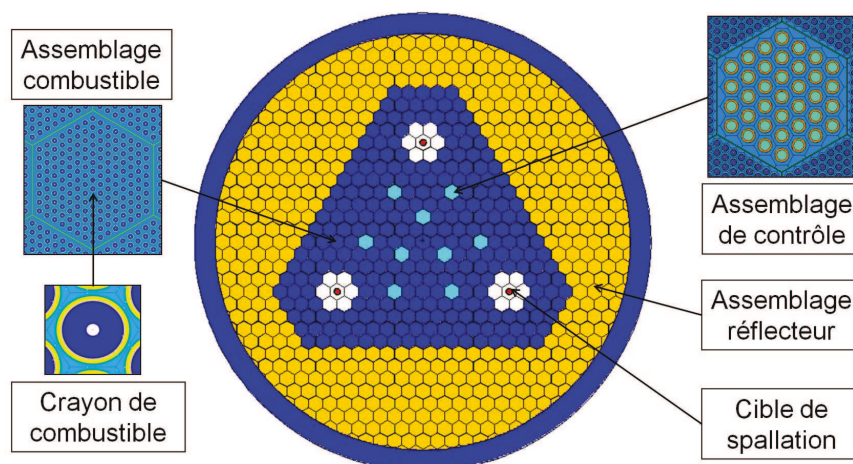


Figure 4.25: Schéma d'un ADS MUST à caloporteur plomb.

Caloporteur	Sodium	Plomb
Nombre d'assemblages combustible	213	265
Nombre d'assemblages de contrôle	12	9
Distance plan à plan du réseau d'assemblages (mm)	206.8	206.8
Épaisseur des structures (mm)	0.8	0.8
Distance plan à plan du réseau de crayons (mm)	12.25	15.05
Diamètre de la pastille de combustible (mm)	9.5	9.5
Diamètre du trou de la pastille de combustible (mm)	2	2
Espace entre la pastille et la gaine (mm)	0.15	0.15
Épaisseur des gaines (mm)	0.7	0.7
Nombre de crayons de combustible par assemblage	271	169
Distance plan à plan du réseau de barres de contrôle (mm)	24.43	30.91
Diamètre de la pastille de B ₄ C (mm)	16.4	16.4
Espace entre la pastille et la gaine (mm)	2.2	2.2
Épaisseur des gaines (mm)	1.0	1.0
Nombre de barres de contrôle par assemblage	37	37

Tableau 4.14: Principales caractéristiques des ADS MUST à caloporteur sodium et plomb

4.6 Deuxième combustible à l'équilibre

Avec les ADS obtenus, les combustibles de toutes les filières sont une première fois optimisés. Pour cela, les sections efficaces microscopiques moyennées sur le flux en énergie $\langle \sigma \rangle$ (équation 3.12), sont extraites avec le programme MURE.

Il est plus rapide d'obtenir une source homogène de neutrons dans un volume plus petit avec le code MCNPX utilisé par le programme MURE. Nous calculons donc les sections efficaces à partir de la simulation d'un assemblage avec des parois latérales réfléchissantes et des crayons contenant le premier combustible à l'équilibre. Ces simulations sont effectuées à partir d'une source que nous avons fait converger au préalable. Les calculs sont faits avec 1000 particules par cycle. Les 20 premiers cycles sont considérés « inactifs » et les 100 suivants sont « actifs ». Les sections efficaces sont alors aisément extraites des résultats.

Afin d'estimer l'approximation faite en utilisant des sections efficaces à 500 keV pour calculer le premier vecteur isotopique de noyaux lourds, nous introduisons le rapport α de la manière suivante :

$$\alpha = \frac{\sigma_f}{\sigma_c} \quad (4.9)$$

Où σ_f et σ_c sont les sections efficaces de fission et de capture. Cette valeur nous informe sur la tendance d'un noyau à faire une fission ou une capture lors d'une interaction avec un neutron.

Nous pouvons estimer la variation du rapport α pour les sections efficaces obtenues à cette étape, α_2 , et pour celles à 500 keV, α_1 , en calculant le rapport R défini par l'expression 4.10.

$$R = \frac{\alpha_2}{\alpha_1} \quad (4.10)$$

La figure 4.26 montre les rapports R pour les filières transmutant les actinides mineurs issus de REP dans des ADS MUST à caloporteurs plomb et sodium.

Cet exemple montre un fort écart pour les isotopes ^{236}U et ^{238}U , mais leurs proportions molaires dans les combustibles sont négligeables. Par contre, les autres rapports R sont beaucoup plus rapprochés avec des valeurs de l'ordre de 0.5 à 2. L'hypothèse de départ de choisir des sections efficaces à 500 keV dans la base de données ENDF-b7 [10] semble donc acceptable.

Pour les isotopes les plus abondants de l'américium, le nouveau rapport α est plus grand que le précédent. Les valeurs de R sont en effet supérieures à 1 pour l' ^{241}Am et l' ^{243}Am , alors que pour les autres noyaux elles sont généralement inférieures à l'unité.

Les sections efficaces, extraites des résultats du code MURE, sont ensuite implémentées dans le fichier d'entrée du programme ACDC. Un calcul partant du premier vecteur isotopique est alors effectué en gardant les autres paramètres identiques à ceux utilisés dans la partie 4.4. Nous obtenons ainsi un deuxième vecteur de noyaux lourds à l'équilibre.

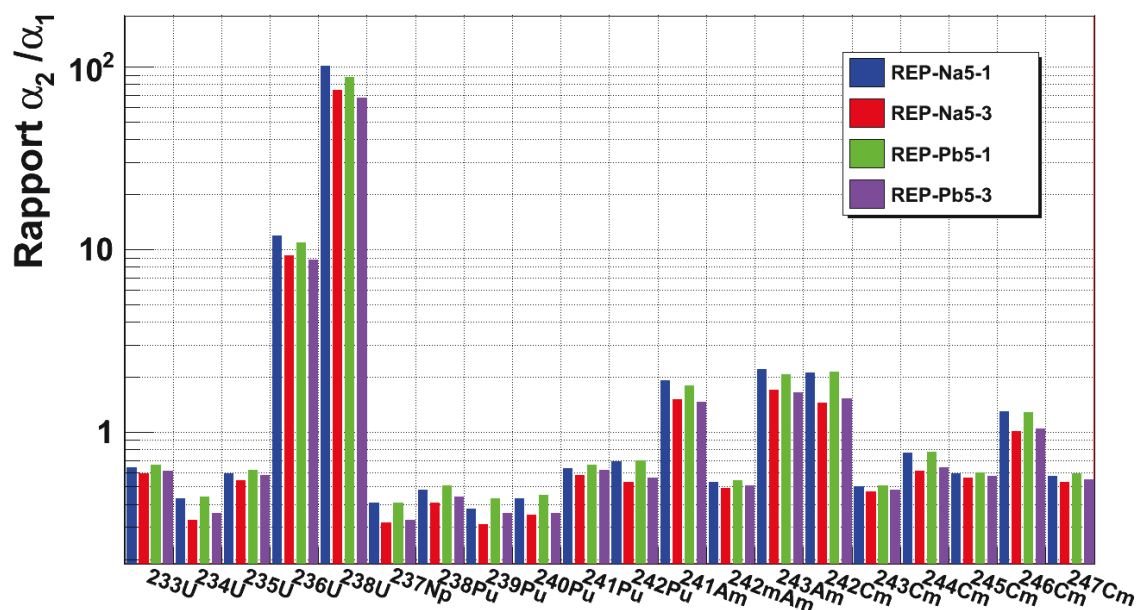


Figure 4.26: Rapport α des sections efficaces obtenues avec le premier combustible divisé par le rapport α des section efficaces à 500 keV des bases de données ENDF-B7 [10]. Les rapports α correspondent à la division des sections efficaces de fission par celles de capture.

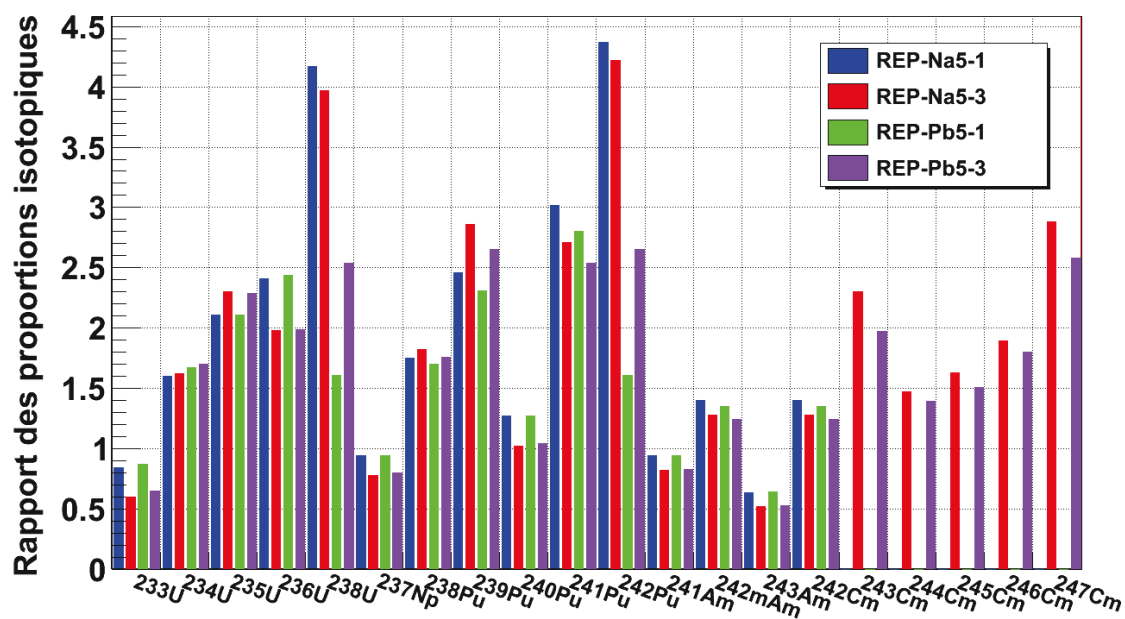


Figure 4.27: Rapport de la proportion isotopique molaire de noyaux lourds du deuxième combustible sur celle du premier combustible.

Le changement des rapports α , entre le premier calcul réalisé avec le code ACDC et le deuxième, influence la composition isotopique à l'équilibre. La figure 4.27 est une illustration de cette constatation. Elle représente les rapports des proportions isotopiques obtenues à cette étape, sur les proportions du premier combustible.

Certaines valeurs sont très élevées mais les isotopes correspondants sont présents en faible quantité comme le ^{238}U et le ^{242}Pu . Pour les isotopes les plus abondants comme le ^{234}U , le ^{238}Pu ou l' ^{241}Am et l' ^{243}Am , les résultats sont compris entre 0.5 et 1.8.

Nous remarquerons que les variations obtenues pour un isotope sont du même ordre de grandeur pour les filières de cet exemple. Seules les stratégies de transmutation influent légèrement sur les résultats.

Enfin, de nouvelles simulations du cœur sont effectuées avec le code MCNPX pour déterminer la quantité de MgO à ajouter. Cette fois-ci, le calcul n'est pas effectué avec seulement un assemblage car nous avons besoin des composantes de fuites pour calculer le coefficient de multiplication du système.

Dans le cas des ADS avec des assemblages de contrôle, la proportion de matrice inerte est donc ajustée afin d'avoir un cœur dont le coefficient de multiplication est d'environ 0.97. Pour les réacteurs sans barre de contrôle, le k_{eff} est de l'ordre de 0.95. Dans les deux approches, la densité du combustible est calculée pour chaque composition avec la méthode décrite dans la partie 4.5.3.

Les tableaux 4.15, 4.16, 4.17 et 4.18 récapitulent les combustibles obtenus pour les différentes filières composées d'ADS MUST avec des assemblages de contrôle.

Nous pouvons remarquer une nette augmentation des quantités de MgO dans l'ensemble des combustibles comparées aux quantités obtenues avec le premier vecteur isotopique. Les proportions molaires sont en effet multipliées par un facteur 1.7 à 2 pour les réacteurs refroidis au sodium et par 2.2 à 2.6 pour les systèmes à caloporteur plomb.

Ces importants changements soulignent clairement les différences entre les compositions des premiers et deuxièmes combustibles obtenus par ce protocole. En analysant la figure 4.27, nous pouvons observer une augmentation des proportions de plutonium dans l'ensemble des combustibles. Or, ces noyaux sont des noyaux produisant plus de neutrons qu'ils n'en consomment. Inversement, les parts d'isotopes aux tendances neutrophages, comme l' ^{241}Am et l' ^{243}Am , diminuent. Le nouveau combustible est donc plus réactif et nécessite plus de MgO pour obtenir un coefficient de multiplication de 0.97.

Le tableau 4.19 donne la proportion de MgO pour les différents ADS MUST sans barre de contrôle. Pour la suite, le vecteur isotopique de noyaux lourds sera pris identique à l'ADS MUST équivalent muni d'assemblages de contrôle.

		Isotopes	REP-Na5-1	REP-Na5-3	REP-Na7-1	REP-Na7-3
		MgO (mol)	2.42	3.55	2.5	3.59
Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds	²³³ U	3.124 · 10 ⁻⁸	7.826 · 10 ⁻⁷	3.028 · 10 ⁻⁸	6.563 · 10 ⁻⁷	
	²³⁴ U	1.140 · 10 ⁻¹	1.042 · 10 ⁻¹	9.762 · 10 ⁻²	8.887 · 10 ⁻²	
	²³⁵ U	1.810 · 10 ⁻²	1.786 · 10 ⁻²	1.547 · 10 ⁻²	1.496 · 10 ⁻²	
	²³⁶ U	1.469 · 10 ⁻²	1.752 · 10 ⁻²	1.334 · 10 ⁻²	1.493 · 10 ⁻²	
	²³⁸ U	1.513 · 10 ⁻⁸	4.405 · 10 ⁻⁸	1.707 · 10 ⁻⁸	4.152 · 10 ⁻⁸	
	²³⁷ Np	1.014 · 10 ⁻³	9.025 · 10 ⁻²	1.043 · 10 ⁻³	9.276 · 10 ⁻²	
	²³⁸ Pu	1.420 · 10 ⁻¹	1.322 · 10 ⁻¹	1.445 · 10 ⁻¹	1.333 · 10 ⁻¹	
	²³⁹ Pu	3.812 · 10 ⁻²	3.903 · 10 ⁻²	3.912 · 10 ⁻²	3.907 · 10 ⁻²	
	²⁴⁰ Pu	8.055 · 10 ⁻²	1.870 · 10 ⁻¹	8.575 · 10 ⁻²	1.770 · 10 ⁻¹	
	²⁴¹ Pu	3.738 · 10 ⁻³	9.811 · 10 ⁻³	4.351 · 10 ⁻³	9.928 · 10 ⁻³	
	²⁴² Pu	2.021 · 10 ⁻³	6.143 · 10 ⁻³	2.396 · 10 ⁻³	6.136 · 10 ⁻³	
	²⁴¹ Am	3.152 · 10 ⁻¹	1.808 · 10 ⁻¹	3.243 · 10 ⁻¹	1.903 · 10 ⁻¹	
	^{242m} Am	1.248 · 10 ⁻²	7.481 · 10 ⁻³	1.249 · 10 ⁻²	7.570 · 10 ⁻³	
	²⁴³ Am	2.580 · 10 ⁻¹	1.319 · 10 ⁻¹	2.596 · 10 ⁻¹	1.392 · 10 ⁻¹	
	²⁴² Cm	3.124 · 10 ⁻⁵	1.961 · 10 ⁻⁵	3.126 · 10 ⁻⁵	1.981 · 10 ⁻⁵	
	²⁴³ Cm	—	3.546 · 10 ⁻⁴	—	3.939 · 10 ⁻⁴	
	²⁴⁴ Cm	—	5.058 · 10 ⁻²	—	5.821 · 10 ⁻²	
	²⁴⁵ Cm	—	1.541 · 10 ⁻²	—	1.708 · 10 ⁻²	
²⁴⁶ Cm	—	8.268 · 10 ⁻³	—	8.827 · 10 ⁻³		
²⁴⁷ Cm	—	1.254 · 10 ⁻³	—	1.321 · 10 ⁻³		

Tableau 4.15: Deuxième combustible proche de l'équilibre des ADS MUST avec assemblages de contrôle et à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et proportion isotopique des noyaux dans une mole de noyaux lourds.

Isotopes		SFR-Na5-1	SFR-Na5-3	SFR-Na7-1	SFR-Na7-3
<i>MgO</i> (mol)		3.22	3.46	3.21	3.51
Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds	²³³ <i>U</i>	3.926 · 10 ⁻⁸	6.742 · 10 ⁻⁷	3.840 · 10 ⁻⁸	5.418 · 10 ⁻⁷
	²³⁴ <i>U</i>	1.482 · 10 ⁻¹	1.386 · 10 ⁻¹	1.274 · 10 ⁻¹	1.191 · 10 ⁻¹
	²³⁵ <i>U</i>	2.435 · 10 ⁻²	2.317 · 10 ⁻²	2.073 · 10 ⁻²	1.976 · 10 ⁻²
	²³⁶ <i>U</i>	1.972 · 10 ⁻²	2.007 · 10 ⁻²	1.751 · 10 ⁻²	1.768 · 10 ⁻²
	²³⁸ <i>U</i>	9.195 · 10 ⁻⁹	2.162 · 10 ⁻⁸	1.031 · 10 ⁻⁸	2.139 · 10 ⁻⁸
	²³⁷ <i>Np</i>	1.290 · 10 ⁻³	7.501 · 10 ⁻²	1.344 · 10 ⁻³	7.410 · 10 ⁻²
	²³⁸ <i>Pu</i>	1.874 · 10 ⁻¹	1.754 · 10 ⁻¹	1.911 · 10 ⁻¹	1.792 · 10 ⁻¹
	²³⁹ <i>Pu</i>	5.127 · 10 ⁻²	4.956 · 10 ⁻²	5.262 · 10 ⁻²	5.094 · 10 ⁻²
	²⁴⁰ <i>Pu</i>	4.692 · 10 ⁻²	9.902 · 10 ⁻²	4.947 · 10 ⁻²	9.521 · 10 ⁻²
	²⁴¹ <i>Pu</i>	2.335 · 10 ⁻³	5.053 · 10 ⁻³	2.675 · 10 ⁻³	5.276 · 10 ⁻³
	²⁴² <i>Pu</i>	1.308 · 10 ⁻³	2.991 · 10 ⁻³	1.521 · 10 ⁻³	3.142 · 10 ⁻³
	²⁴¹ <i>Am</i>	4.010 · 10 ⁻¹	2.962 · 10 ⁻¹	4.176 · 10 ⁻¹	3.134 · 10 ⁻¹
	^{242m} <i>Am</i>	1.350 · 10 ⁻²	1.015 · 10 ⁻²	1.334 · 10 ⁻²	1.018 · 10 ⁻²
	²⁴³ <i>Am</i>	1.027 · 10 ⁻¹	7.403 · 10 ⁻²	1.047 · 10 ⁻¹	7.709 · 10 ⁻²
	²⁴² <i>Cm</i>	3.378 · 10 ⁻⁵	2.784 · 10 ⁻⁵	3.340 · 10 ⁻⁵	2.836 · 10 ⁻⁵
	²⁴³ <i>Cm</i>	—	2.657 · 10 ⁻⁴	—	2.885 · 10 ⁻⁴
	²⁴⁴ <i>Cm</i>	—	2.262 · 10 ⁻²	—	2.584 · 10 ⁻²
	²⁴⁵ <i>Cm</i>	—	4.901 · 10 ⁻³	—	5.533 · 10 ⁻³
²⁴⁶ <i>Cm</i>	—	2.502 · 10 ⁻³	—	2.816 · 10 ⁻³	
²⁴⁷ <i>Cm</i>	—	3.709 · 10 ⁻⁴	—	4.154 · 10 ⁻⁴	

Tableau 4.16: Deuxième combustible proche de l'équilibre des ADS MUST avec assemblages de contrôle et à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et proportion isotopique des noyaux dans une mole de noyaux lourds.

		Isotopes	REP-Pb3-1	REP-Pb3-3	REP-Pb5-1	REP-b5-3
		<i>MgO</i> (mol)	1.4	2.28	1.53	2.49
Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds	²³³ <i>U</i>	$3.565 \cdot 10^{-8}$	$1.219 \cdot 10^{-6}$	$3.217 \cdot 10^{-8}$	$8.469 \cdot 10^{-7}$	
	²³⁴ <i>U</i>	$1.464 \cdot 10^{-1}$	$1.353 \cdot 10^{-1}$	$1.187 \cdot 10^{-1}$	$1.089 \cdot 10^{-1}$	
	²³⁵ <i>U</i>	$2.205 \cdot 10^{-2}$	$2.183 \cdot 10^{-2}$	$1.810 \cdot 10^{-2}$	$1.779 \cdot 10^{-2}$	
	²³⁶ <i>U</i>	$1.482 \cdot 10^{-2}$	$1.904 \cdot 10^{-2}$	$1.482 \cdot 10^{-2}$	$1.759 \cdot 10^{-2}$	
	²³⁸ <i>U</i>	$3.004 \cdot 10^{-8}$	$4.726 \cdot 10^{-8}$	$2.837 \cdot 10^{-8}$	$5.220 \cdot 10^{-8}$	
	²³⁷ <i>Np</i>	$9.684 \cdot 10^{-4}$	$9.320 \cdot 10^{-2}$	$1.006 \cdot 10^{-3}$	$9.217 \cdot 10^{-2}$	
	²³⁸ <i>Pu</i>	$1.263 \cdot 10^{-1}$	$1.177 \cdot 10^{-1}$	$1.375 \cdot 10^{-1}$	$1.276 \cdot 10^{-1}$	
	²³⁹ <i>Pu</i>	$3.311 \cdot 10^{-2}$	$3.324 \cdot 10^{-2}$	$3.577 \cdot 10^{-2}$	$3.622 \cdot 10^{-2}$	
	²⁴⁰ <i>Pu</i>	$7.500 \cdot 10^{-2}$	$2.032 \cdot 10^{-1}$	$8.057 \cdot 10^{-2}$	$1.900 \cdot 10^{-1}$	
	²⁴¹ <i>Pu</i>	$2.651 \cdot 10^{-3}$	$8.043 \cdot 10^{-3}$	$3.459 \cdot 10^{-3}$	$9.168 \cdot 10^{-3}$	
	²⁴² <i>Pu</i>	$2.939 \cdot 10^{-3}$	$5.606 \cdot 10^{-3}$	$3.092 \cdot 10^{-3}$	$6.399 \cdot 10^{-3}$	
	²⁴¹ <i>Am</i>	$3.010 \cdot 10^{-1}$	$1.720 \cdot 10^{-1}$	$3.127 \cdot 10^{-1}$	$1.808 \cdot 10^{-1}$	
	^{242m} <i>Am</i>	$1.158 \cdot 10^{-2}$	$6.873 \cdot 10^{-3}$	$1.202 \cdot 10^{-2}$	$7.241 \cdot 10^{-3}$	
	²⁴³ <i>Am</i>	$2.632 \cdot 10^{-1}$	$1.288 \cdot 10^{-1}$	$2.623 \cdot 10^{-1}$	$1.346 \cdot 10^{-1}$	
	²⁴² <i>Cm</i>	$2.875 \cdot 10^{-5}$	$1.789 \cdot 10^{-5}$	$2.985 \cdot 10^{-5}$	$1.883 \cdot 10^{-5}$	
	²⁴³ <i>Cm</i>	—	$2.353 \cdot 10^{-4}$	—	$3.045 \cdot 10^{-4}$	
	²⁴⁴ <i>Cm</i>	—	$3.605 \cdot 10^{-2}$	—	$4.793 \cdot 10^{-2}$	
	²⁴⁵ <i>Cm</i>	—	$1.160 \cdot 10^{-2}$	—	$1.426 \cdot 10^{-2}$	
²⁴⁶ <i>Cm</i>	—	$6.473 \cdot 10^{-3}$	—	$7.869 \cdot 10^{-3}$		
²⁴⁷ <i>Cm</i>	—	$9.125 \cdot 10^{-4}$	—	$1.123 \cdot 10^{-3}$		

Tableau 4.17: Deuxième combustible proche de l'équilibre des ADS MUST avec assemblages de contrôle et à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et proportion isotopique des noyaux dans une mole de noyaux lourds.

		Isotopes	SFR-Pb3-1	SFR-Pb3-3	SFR-Pb5-1	SFR-Pb5-3
		<i>MgO</i> (mol)	2.08	2.28	2.21	2.47
Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds	^{233}U	$4.452 \cdot 10^{-8}$	$1.080 \cdot 10^{-6}$	$4.057 \cdot 10^{-8}$	$7.184 \cdot 10^{-7}$	
	^{234}U	$1.941 \cdot 10^{-1}$	$1.809 \cdot 10^{-1}$	$1.559 \cdot 10^{-1}$	$1.456 \cdot 10^{-1}$	
	^{235}U	$3.068 \cdot 10^{-2}$	$2.919 \cdot 10^{-2}$	$2.468 \cdot 10^{-2}$	$2.358 \cdot 10^{-2}$	
	^{236}U	$2.043 \cdot 10^{-2}$	$2.159 \cdot 10^{-2}$	$2.000 \cdot 10^{-2}$	$2.063 \cdot 10^{-2}$	
	^{238}U	$2.885 \cdot 10^{-8}$	$3.383 \cdot 10^{-8}$	$2.393 \cdot 10^{-8}$	$3.349 \cdot 10^{-8}$	
	^{237}Np	$1.222 \cdot 10^{-3}$	$8.121 \cdot 10^{-2}$	$1.283 \cdot 10^{-3}$	$7.646 \cdot 10^{-2}$	
	^{238}Pu	$1.667 \cdot 10^{-1}$	$1.556 \cdot 10^{-1}$	$1.826 \cdot 10^{-1}$	$1.709 \cdot 10^{-1}$	
	^{239}Pu	$4.429 \cdot 10^{-2}$	$4.266 \cdot 10^{-2}$	$4.852 \cdot 10^{-2}$	$4.710 \cdot 10^{-2}$	
	^{240}Pu	$4.196 \cdot 10^{-2}$	$1.058 \cdot 10^{-1}$	$4.575 \cdot 10^{-2}$	$1.006 \cdot 10^{-1}$	
	^{241}Pu	$1.590 \cdot 10^{-3}$	$4.135 \cdot 10^{-3}$	$2.112 \cdot 10^{-3}$	$4.795 \cdot 10^{-3}$	
	^{242}Pu	$2.659 \cdot 10^{-3}$	$3.625 \cdot 10^{-3}$	$2.556 \cdot 10^{-3}$	$3.897 \cdot 10^{-3}$	
	^{241}Am	$3.797 \cdot 10^{-1}$	$2.721 \cdot 10^{-1}$	$3.988 \cdot 10^{-1}$	$2.927 \cdot 10^{-1}$	
	^{242m}Am	$1.271 \cdot 10^{-2}$	$9.286 \cdot 10^{-3}$	$1.312 \cdot 10^{-2}$	$9.835 \cdot 10^{-3}$	
	^{243}Am	$1.040 \cdot 10^{-1}$	$7.170 \cdot 10^{-2}$	$1.047 \cdot 10^{-1}$	$7.477 \cdot 10^{-2}$	
	^{242}Cm	$3.156 \cdot 10^{-5}$	$2.485 \cdot 10^{-5}$	$3.256 \cdot 10^{-5}$	$2.670 \cdot 10^{-5}$	
	^{243}Cm	—	$1.616 \cdot 10^{-4}$	—	$2.140 \cdot 10^{-4}$	
	^{244}Cm	—	$1.649 \cdot 10^{-2}$	—	$2.167 \cdot 10^{-2}$	
	^{245}Cm	—	$3.478 \cdot 10^{-3}$	—	$4.525 \cdot 10^{-3}$	
	^{246}Cm	—	$1.835 \cdot 10^{-3}$	—	$2.414 \cdot 10^{-3}$	
^{247}Cm	—	$2.568 \cdot 10^{-4}$	—	$3.416 \cdot 10^{-4}$		

Tableau 4.18: Deuxième combustible proche de l'équilibre des ADS MUST avec assemblages de contrôle et à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et proportion isotopique des noyaux dans une mole de noyaux lourds.

	REP-95Na5-1	REP-95Na5-3	SFR-95Na5-1	SFR-95Na5-3
MgO (mol)	2.81	4.09	3.68	3.95

Tableau 4.19: Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds dans le deuxième combustible des ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle.

4.7 Détermination de la puissance thermique

Les caractéristiques géométriques étant établies et la composition du deuxième combustible à l'équilibre établie, la suite de la méthode consiste à estimer la puissance du cœur.

4.7.1 Facteur de forme

Définition

Afin d'obtenir la cartographie du flux neutronique dans le cœur, ce dernier est discrétisé en N_p parties pour obtenir un découpage en trois dimensions. Ainsi pour une parcelle dont la position est définie par x_i , y_j et z_k , le flux neutronique $\Phi(x_i, y_j, z_k)$ est la valeur locale du flux neutronique.

Pour définir le facteur de forme, nous avons besoin d'introduire deux grandeurs. La première est le flux neutronique maximal (Φ_{Max}) et la deuxième est le flux neutronique moyen (Φ_m). Le flux maximal est la plus grande valeur locale du flux neutronique dans la zone de combustible. Le flux neutronique moyen correspond à la moyenne de l'ensemble des contributions locales du flux neutronique dans la zone de combustible (équation 4.11).

$$\Phi_m = \frac{\sum_{i,j,k} \Phi(x_i, y_j, z_k)}{N_p} \quad (4.11)$$

Le facteur de forme Γ_{FF} est alors défini par l'expression 4.12, c'est-à-dire le rapport du flux maximal et moyen dans la zone de combustible du cœur.

$$\Gamma_{FF} = \frac{\Phi_{Max}}{\Phi_m} \quad (4.12)$$

Ce facteur nous informe donc sur les écarts de flux neutroniques locaux au sein du cœur. S'il est proche de l'unité cela signifie que l'irradiation est relativement uniforme pour l'ensemble du combustible. Inversement, un Γ_{FF} éloigné de 1 met en évidence une hétérogénéité des flux locaux dans le cœur.

Application aux ADS MUST

Afin d'estimer Γ_{FF} dans les filières étudiées, une simulation du cœur est effectuée avec le code MCNPX. Les particules sources sont des protons de 1 GeV monodirectionnels dirigés

de manière équirépartie vers chaque cible de spallation. Le cœur est discrétisé selon le plan axial avec un réseau cartésien dont chaque élément est un parallélépipède à base carrée de 1 cm d'arête et de 120 cm de hauteur.

Une carte du flux neutronique intégré sur toute la hauteur de l'ADS est alors obtenue à partir des valeurs extraites de chacun des éléments du réseau. Les figures 4.28 et 4.29 sont des exemples des résultats obtenus pour un ADS MUST transmutant uniquement l'américium issu de REP avec et sans assemblage de contrôle.

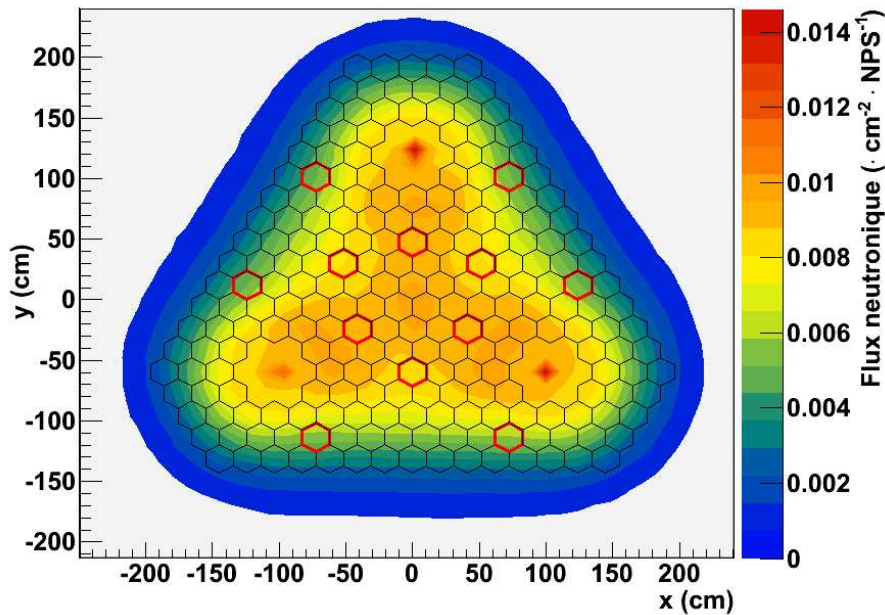


Figure 4.28: Flux neutronique normalisé par proton source (NPS) et intégré sur toute la hauteur du cœur d'un ADS MUST à caloporteur sodium. Les assemblages dont le contour est surligné en rouge, sont les assemblages de contrôle. Résultat obtenu pour une filière REP-Na5-1.

Pour le réacteur avec des assemblages de contrôle, nous pouvons remarquer l'homogénéité des valeurs spatiales du flux neutronique notamment dans la partie centrale du cœur. Les valeurs sont par contre plus faibles pour l'ADS sans assemblage de contrôle.

La différence entre les résultats obtenus avec les deux systèmes est corrélée à leur coefficient de multiplication. En effet, dans un combustible homogène, avec un k_{eff} de 0.95, le flux neutronique lié à une cible diminue beaucoup plus vite avec la distance que pour un k_{eff} de 0.97. Ainsi la somme des contributions de chacune des cibles de spallation dans la partie centrale du cœur est nettement plus faible pour les ADS sans assemblage de contrôle.

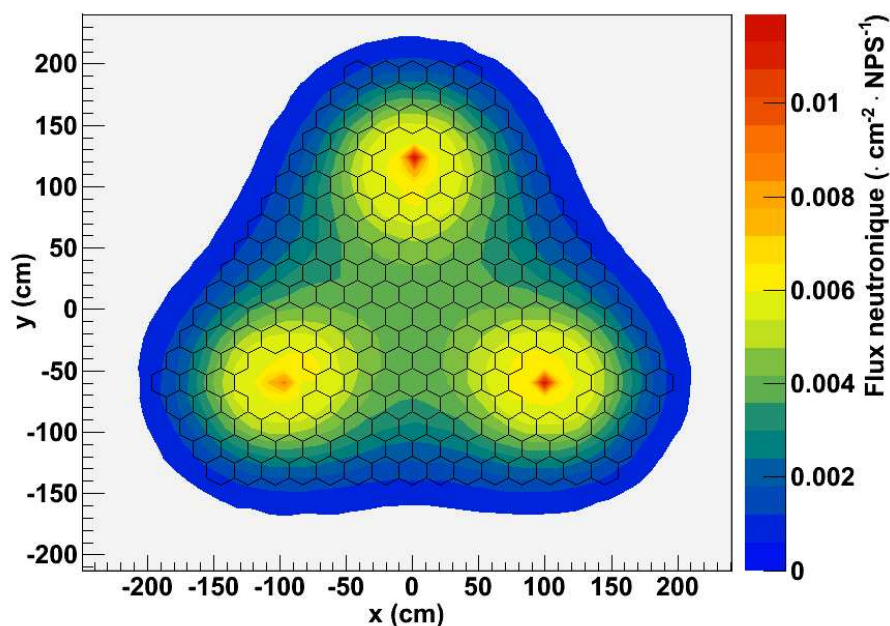


Figure 4.29: Flux neutronique normalisé par proton source et intégré sur toute la hauteur du cœur d'un ADS MUST sans assemblage de contrôle à caloporteur sodium. Résultat obtenu pour la filière REP-95Na5-1.

En prenant en compte uniquement les assemblages de combustibles, cela permet de calculer Φ_{Max} et Φ_m afin de déterminer le facteur de forme. Le tableau 4.20 récapitule les Γ_{FF} obtenus pour les différentes filières étudiées.

Code	Γ_{FF}
REP-Na5-1	1.40
REP-Na5-3	1.46
REP-Na7-1	1.43
REP-Na7-3	1.41
SFR-Na5-1	1.42
SFR-Na5-3	1.40
SFR-Na7-1	1.42
SFR-Na7-3	1.42

Code	Γ_{FF}
REP-95Na5-1	1.82
REP-95Na5-3	1.76
SFR-95Na5-1	1.83
SFR-95Na5-3	1.77

Code	Γ_{FF}
REP-Pb3-1	1.66
REP-Pb3-3	1.63
REP-Pb5-1	1.73
REP-Pb5-3	1.59
SFR-Pb3-1	1.64
SFR-Pb3-3	1.65
SFR-Pb5-1	1.64
SFR-Pb5-3	1.62

Tableau 4.20: Facteur de forme des différentes filières étudiées. Les filières composées d'ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle à gauche, avec assemblages de contrôle au centre et à droite celles dont les ADS MUST sont refroidis au plomb.

On observe des valeurs de l'ordre de 1.4 pour les réacteurs à caloporteur sodium avec des assemblages de contrôle, de 1.8 sans et de 1.6 pour ceux refroidis au plomb. Dans le premier cas cela signifie que le flux moyen correspond à environ 70 % du flux qui règne près des cibles. L'écart entre Φ_m et Φ_{Max} est plus important dans les deux autres cas avec des valeurs de 55 % et 60 % respectivement.

Pour comprendre l'écart de résultats entre les systèmes avec assemblages de contrôle et ceux non munis de ces assemblages, pour des filières similaires, nous effectuons le même calcul, à partir d'un ADS MUST sans assemblage de contrôle, mais avec une proportion de MgO permettant d'avoir un coefficient multiplicateur d'environ 0.97.

Nous rappelons que pour le deuxième combustible à l'équilibre, utilisé à cette étape, les vecteurs isotopiques de noyaux lourds de filières similaires, avec des ADS composés ou non d'assemblage de contrôle, sont identiques. Les différences entre les systèmes sont seulement les proportions molaires de MgO et la présence ou non d'assemblage de contrôle.

Ainsi nous obtenons, par exemple pour la filière REP-Na5-1, un facteur de forme de 1.4. Le k_{eff} de 0.95 est donc responsable de la faible valeur du facteur de forme. Le flux radial lié à une cible de spallation diminue plus rapidement avec la distance pour un coefficient de multiplication plus faible.

4.7.2 Calcul couplé de neutronique et de thermo-hydraulique

Cette étape a pour objectif de déterminer la puissance maximale par crayon permettant de conserver une température de fonctionnement acceptable sans risquer leur détérioration.

Température du point chaud d'un crayon

À l'aide de la classe de thermo-hydraulique BATH du code MURE (voir partie 3.2.5), nous calculons la température des crayons en fonction de leur puissance. Pour cela, un assemblage discrétisé sur sa hauteur est simulé pour toutes les filières étudiées afin d'obtenir le profil axial de température du combustible. Il est découpé en 25 parties dont chacune mesure 4 centimètres de haut.

Le programme effectue trois itérations pour affiner les résultats des calculs. Ainsi à la fin du premier calcul, une première estimation des températures des différents matériaux du système dans chaque cellule est obtenue. Elles sont alors prises en compte afin de déterminer pour chacun la densité, la viscosité, la conductivité et la capacité calorifique. Les sections efficaces sont également adaptées en utilisant les valeurs pour les températures les plus proches de celle du matériau, disponibles dans les bases de données de l'utilisateur. Dans notre cas, les bases de données de sections efficaces utilisées ont des pas en température de 100 Kelvin.

Une fois toutes les caractéristiques ajustées avec les résultats obtenus par le premier calcul, un nouveau est effectué. Puis un nouvel affinement des paramètres est réalisé à la fin du deuxième calcul avant de commencer le troisième. Les valeurs de la température des crayons utilisées par la suite, sont celles obtenues par ce dernier.

Le programme MURE réalise les calculs de thermo-hydraulique à partir de données d'entrées supplémentaires par rapport aux simulations d'évolution du combustible. Les caractéristiques utilisées pour les ADS MUST sont détaillées dans ce paragraphe.

Les températures d'entrée du caloporteur sont de 668 K pour les systèmes au sodium [34] et de 673 K pour ceux au plomb [81]. Les densités correspondent à celles des fluides en sortie de cœur, soit $0.852 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ pour le premier et $10.51 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ pour le deuxième.

Les débits massiques sont très différents selon le fluide caloporteur avec une valeur de $8114 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le sodium et $20942 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le plomb. Ces caractéristiques sont définies à partir d'une vitesse d'écoulement de $10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le Na et de $2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le Pb [82]. La limite principale de cette dernière valeur est liée au fort potentiel de corrosion du plomb.

La classe BATH a également besoin de caractéristiques géométriques comme la forme des assemblages, dans notre cas : hexagonale. Les rayons des pastilles, de l'intérieur de la gaine et du crayon complet sont également nécessaires (tableau 4.14). La hauteur des cellules est de 4 cm, et la surface d'un élément de réseau de crayons est de 4.24 cm^2 pour les assemblages à caloporteur sodium et de 5.51 cm^2 pour ceux refroidis au plomb.

Enfin le type d'alliage des gaines est un acier, il est défini par le mot clé « steel » dans le programme. Et le type de combustible utilisé est également explicité. Pour nos études, il s'agit de combustible de type CERCER (CERamic-CERamic), c'est à dire un mélange d'oxyde de noyaux lourds et d'une matrice de MgO.

Le combustible étant différent pour chacune des filières étudiées, nous calculons systématiquement la conductivité thermique λ_C nécessaire au calcul de thermo-hydraulique. Nous utilisons pour cela l'équation 4.13 déterminant l'influence, sur la conductivité thermique, d'inclusions sphériques d'oxydes de métaux lourds dans une matrice de MgO [83].

Dans cette équation, λ_M , λ_D et λ_C sont les conductivités de la matrice, de la phase dispersée (ici de l'oxyde de noyaux lourds) et du composite soit dans notre cas du combustible.

$$1 - C_d = \frac{\lambda_D - \lambda_C}{\lambda_D - \lambda_M} \left(\frac{\lambda_M}{\lambda_C} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (4.13)$$

C_d est la fraction volumique de l'oxyde de noyaux lourds sur le volume total. Sa valeur est déterminée avec l'équation 4.14, dans laquelle V_{HNO2} est le volume occupé par les oxydes de

noyaux lourds et V_{MgO} le volume de la matrice inerte.

$$C_d = \frac{V_{HNO2}}{V_{HNO2} + V_{MgO}} \quad (4.14)$$

Certaines conductivités thermiques étant mal connues, comme celle du CmO_2 , et afin d'inclure une marge de sécurité, nous avons choisi de prendre en compte uniquement la conductivité thermique du MgO . Nous considérons donc nulles les conductivités des oxydes d'uranium, de plutonium et des actinides mineurs.

Cette hypothèse conduit à sous-estimer la conductivité thermique du combustible, donc sa capacité à échanger avec le caloporteur la chaleur qu'il produit. En conséquence, cela implique une sur-évaluation des températures dans le crayon pour une puissance injectée donnée. La puissance de fonctionnement maximale d'un crayon sera donc sous-évaluée.

Ce choix est fortement pénalisant et nous l'avons fait de manière à induire une marge de sécurité sur les conclusions de l'étude de thermo-hydraulique. En effet, une caractérisation plus précise d'un ADS de grande puissance impliquerait des calculs de thermo-hydraulique beaucoup plus poussés, en dehors du cadre de cette thèse dont la priorité est d'obtenir les ordres de grandeurs des capacités de transmutation d'un ADS de grande puissance.

De plus, le calcul de thermo-hydraulique réalisé par le code MURE, ne prend pas en compte la dégradation des pastilles de combustible au cours de l'irradiation, dont la conséquence serait de dégrader la conductivité thermique. Or, l'écart sur les conductivités thermiques entre le début et la fin de cycle peut être de l'ordre de 20 % [84]. Notre hypothèse sur le calcul de la conductivité thermique du combustible permet donc de compenser cette erreur.

Il est donc envisageable d'affiner les résultats obtenus à cette étape lors de futures études. Il serait en effet intéressant de connaître avec plus de précisions l'effet de la dégradation du combustible au cours de l'irradiation et de calculer la conductivité thermique du combustible en prenant en compte l'ensemble de ses composants. Mais dans cette étude, nous avons préféré suivre une approche de sûreté, même si elle peut pénaliser le potentiel des ADS MUST.

Nous obtenons alors l'équation 4.15 à partir de la relation 4.13 avec λ_D égale à 0.

$$\lambda_C = \lambda_M (1 - C_d)^{\frac{3}{2}} \quad (4.15)$$

Le calcul couplé de neutronique et de thermo-hydraulique fournit les profils de températures longitudinaux dans les crayons. Les points sont alors ajustés par la somme d'une gaussienne et d'une fonction affine, décrite par l'expression 4.16, dans laquelle P_0 , P_1 , P_2 , P_3 et P_4 sont les paramètres d'ajustement et z la position axiale.

$$f(x) = P_0 + P_1 z + P_2 \exp \left[- \left(\frac{z - P_3}{2P_4} \right)^2 \right] \quad (4.16)$$

La valeur maximale de cette fonction détermine la température du point le plus chaud des crayons.

La figure 4.30 montre des exemples de résultats obtenus par cette méthode. Les carrés, les cercles et les losanges correspondent respectivement aux valeurs extraites des calculs effectués avec le programme MURE pour des crayons dont la puissance est de 33 kW pour des ADS à caloporteur plomb et sodium avec ou sans assemblage de contrôle. Les courbes rouges sont les ajustements de ces points par la fonction 4.16.

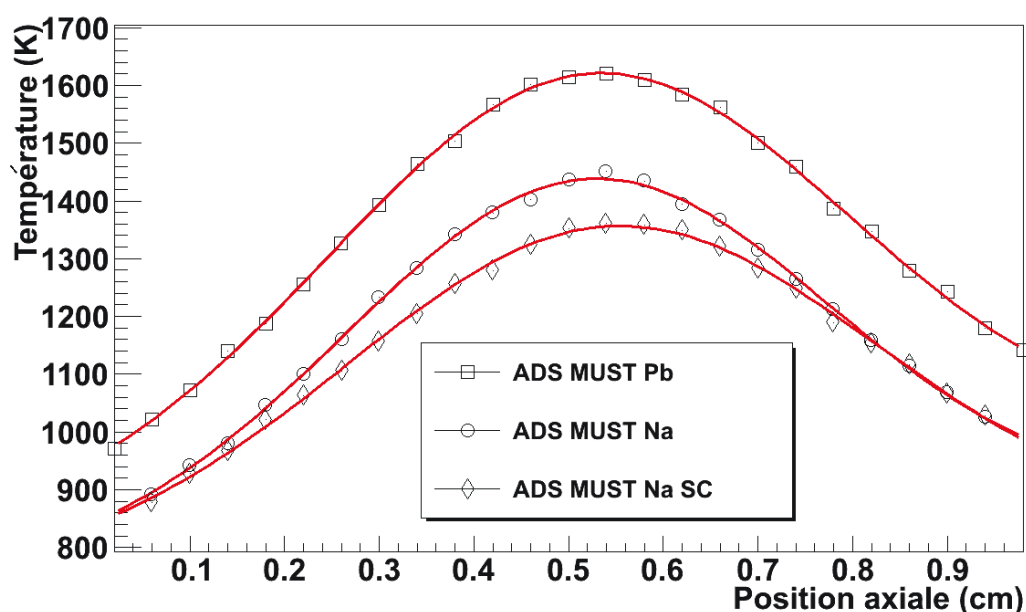


Figure 4.30: Point chaud du crayon en fonction de la position axiale pour des crayons dont la puissance est de 33 kW. Les carrés, les cercles et les losanges correspondent aux filières REP-Pb5-3, REP-Na5-3 et REP-95Na5-3. Les courbes sont les ajustements respectifs des résultats de chaque filière.

Ces calculs sont réalisés pour plusieurs puissances de crayons afin de connaître l'évolution de la température maximale des crayons en fonction de celle-ci.

Puissance d'utilisation du crayon

Nous avons alors à notre disposition la température du point chaud des crayons en fonction de leur puissance. Pour un combustible de type CERCER composé de 50 % de matrice inerte, la température de dissociation est estimée à 1653 K [30]. Afin de laisser une marge de sécurité suffisante, nous prendrons une température maximale de fonctionnement 5 % inférieure, d'autant plus que la part de matrice inerte dans le combustible des filières étudiées est très variable.

Donc la température maximale de fonctionnement (T_f) appliquée est de 1570 K.

Les figures 4.31, 4.32 et 4.33 représentent les températures maximales des crayons en fonction de la puissance injectée pour l'ensemble des filières étudiées. La ligne horizontale rouge foncée est la limite de 1653 K et la bleue claire est la température de fonctionnement de 1570 K.

Pour déterminer la puissance maximale de fonctionnement du crayon, une extrapolation linéaire est effectuée entre les résultats de simulation encadrant T_f . Le tableau 4.21 récapitule les valeurs obtenues pour les différentes filières.

Code	N_{MgO} (mol)	P_{MaxC} (kW)
REP-Na5-1	2.42	30.51
REP-Na5-3	3.55	35.47
REP-Na7-1	2.50	30.55
REP-Na7-3	3.59	35.70
SFR-Na5-1	3.22	34.12
SFR-Na5-3	3.46	34.94
SFR-Na7-1	3.21	34.66
SFR-Na7-3	3.5	35.24
REP-Pb3-1	2.08	24.15
REP-Pb3-3	2.28	30.88
REP-Pb5-1	2.21	25.50
REP-Pb5-3	2.47	32.29
SFR-Pb3-1	2.81	29.75
SFR-Pb3-3	4.09	31.10
SFR-Pb5-1	3.68	30.51
SFR-Pb5-3	3.95	32.10
REP-95Na5-1	1.40	32.09
REP-95Na5-3	2.28	37.13
SFR-95Na5-1	1.53	35.65
SFR-95Na5-3	2.49	36.87

Tableau 4.21: Nombre de mole de MgO (N_{MgO}) pour une mole de noyaux lourds et puissance maximale de fonctionnement des crayons de combustible P_{MaxC} des différentes filières.

L'importance de la proportion de matrice inerte dans le combustible est très nette comme le montre la figure 4.34. Cette dernière représente la puissance maximale des crayons en fonction

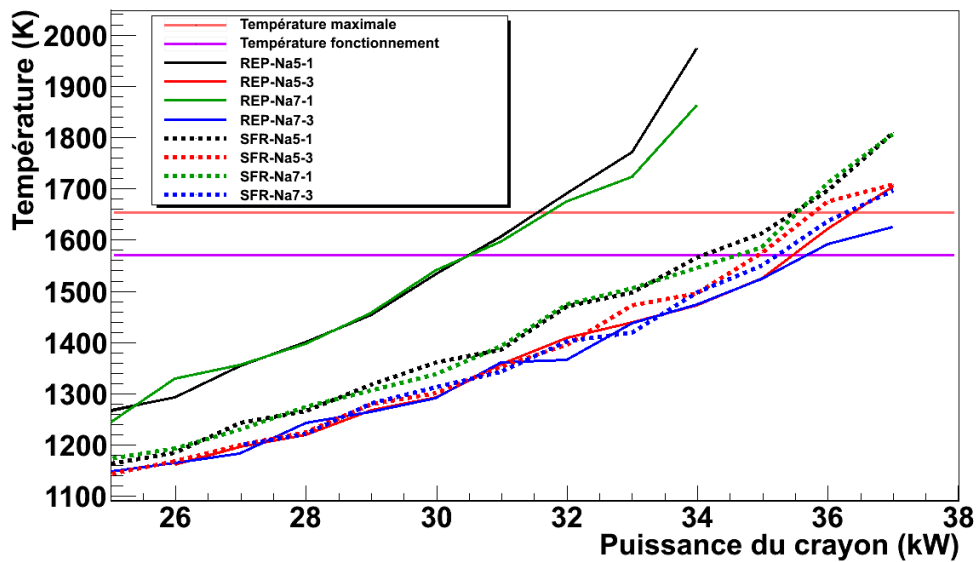


Figure 4.31: Température du point chaud du crayon en fonction de sa puissance pour les ADS MUST à caloporteur sodium. La température maximale est égale à 1653 K et celle de fonctionnement à 1570 K.

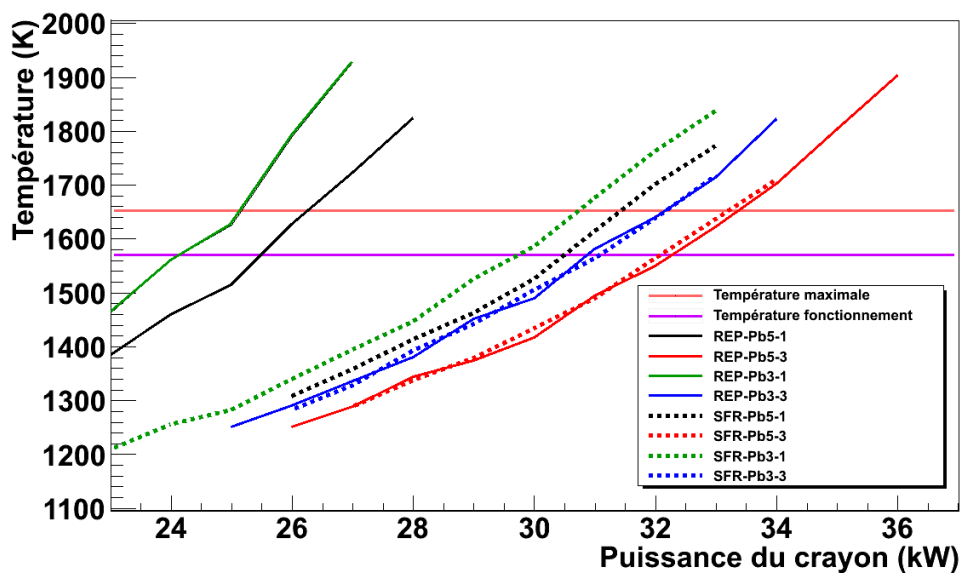


Figure 4.32: Température du point chaud du crayon en fonction de sa puissance pour les ADS MUST à caloporteur plomb. La température maximale est égale à 1653 K et celle de fonctionnement à 1570 K.

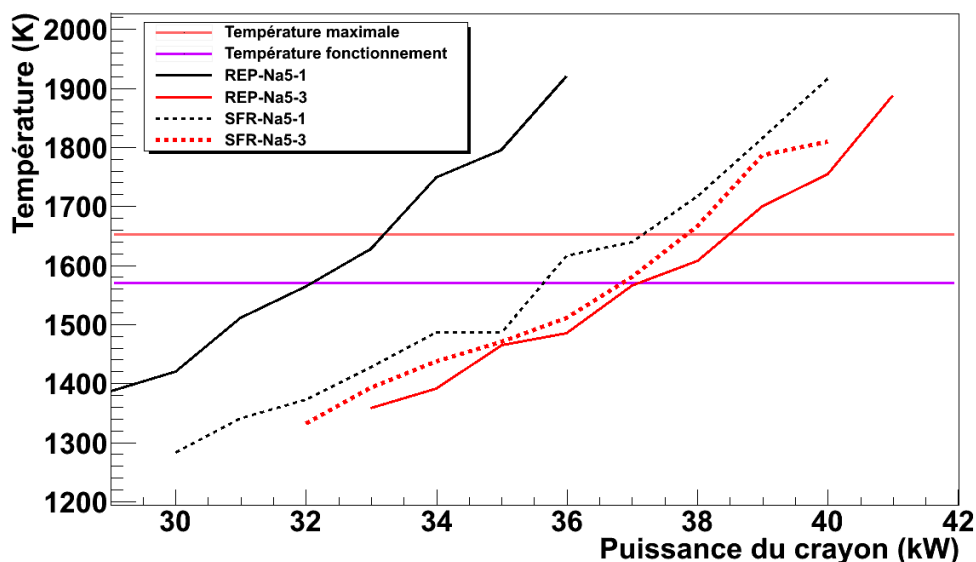


Figure 4.33: Température du point chaud du crayon en fonction de sa puissance pour les ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle. La température maximale est égale à 1653 K et celle de fonctionnement à 1570 K.

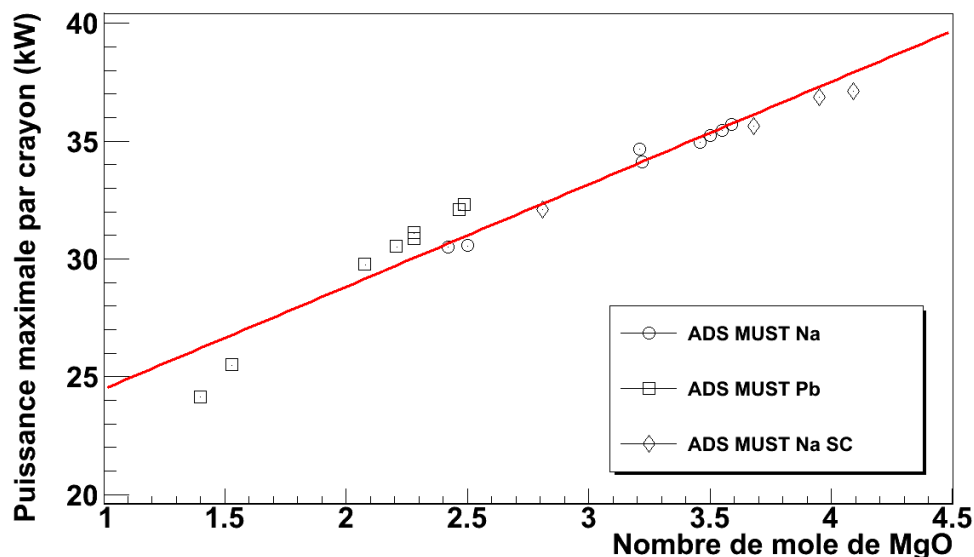


Figure 4.34: Puissance maximale des crayons en fonction du nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds. Les cercles et les carrés sont les valeurs obtenues pour les ADS MUST munis d'assemblages de contrôle à caloporteur sodium et plomb, les losanges correspondent aux résultats des réacteurs sans assemblage de contrôle. La droite est un ajustement linéaire de l'ensemble des valeurs.

de la proportion de MgO pour une mole de noyaux lourds. Elle met en évidence l'influence de la quantité de matrice inerte et justifie entièrement les différences observées pour des filières composées d'ADS ayant le même caloporteur. Pour les cas où la quantité de MgO dans le combustible est faible, la puissance maximale l'est également et inversement.

Par conséquent, la stratégie de transmutation et la strate électrogène influent sur les résultats. Les combustibles liés à la transmutation de l'américium seul ont moins de matrice inerte et donc une puissance plus faible que les scénarios équivalents cherchant à transmuter l'ensemble des actinides mineurs. Cet écart de puissance est de 5 à 7 kW pour les combustibles transmutant les actinides mineurs issus de REP, mais inférieur à 1.5 kW pour une première strate de SFR.

On observe également que pour des quantités équivalentes de matrice inerte, les valeurs trouvées sont relativement similaires pour les ADS MUST refroidis au plomb et au sodium. Par conséquent même si ces deux fluides caloporteurs ont des densités, des conductivités thermiques, des capacités calorifiques, des viscosités et des débits massiques différents, ils arrivent à extraire des quantités comparables de puissance. Donc dans les conditions étudiées, les systèmes semblent avoir des potentiels de refroidissement assez proches avec les deux caloporteurs.

4.7.3 Puissance de l'ADS MUST et flux neutronique dans le cœur

À l'aide du facteur de forme du flux neutronique (Γ_{FF}) et de la puissance maximale d'utilisation des crayons ($P_{MaxCrayon}$), la puissance thermique (P) et le flux neutronique (Φ) au sein de l'ADS MUST sont calculés dans cette partie.

La puissance du système P est calculée avec la formule 4.17 dans laquelle $P_{MaxCrayon}$ et Γ_{FF} sont la puissance maximale des crayons et le facteur de forme du flux neutronique. $N_{Assemblage}$ et N_{Crayon} sont les nombres : d'assemblages de combustible du cœur, et de crayons dans chacun d'eux.

$$P = \frac{P_{MaxCrayon} \cdot N_{Crayon} \cdot N_{Assemblage}}{\Gamma_{FF}} \quad (4.17)$$

Il est également possible d'estimer avec l'expression 4.18, la valeur du flux neutronique dans le cœur, à l'aide de sa valeur locale maximale Φ_{Max} et du facteur de forme Γ_{FF} (équation 4.12) obtenu au début de cette partie 4.7.1.

$$\Phi = \frac{\Phi_{Max}}{\Gamma_{FF}} \quad (4.18)$$

Pour résoudre cette équation, il faut déterminer Φ_{Max} . Pour cela nous utilisons le lien entre la puissance et le taux de réaction donnant l'expression suivante :

$$P_{MaxCrayon} = \left[\langle E_f \rangle \cdot \sum_i N_i \cdot \langle \sigma_{fi} \rangle \right] \cdot \Phi_{Max} \quad (4.19)$$

$\langle E_f \rangle$ est l'énergie moyenne émise par une fission. Nous supposons cette valeur égale à 200 MeV car c'est l'ordre de grandeur pour les noyaux lourds étudiés. N_i représente la quantité de noyaux de l'isotope i , dont la section efficace microscopique de fission intégrée sur le spectre (équation 3.12) est $\langle \sigma_{fi} \rangle$.

N_i est défini par :

$$N_i = \frac{\rho \cdot N_A \cdot V}{A_{Tot}} \cdot \tau_i \quad (4.20)$$

Dans cette expression τ_i est la proportion du noyau i par rapport aux autres noyaux lourds et ρ est la densité du combustible. N_A et V sont respectivement le nombre d'Avogadro et le volume de combustible dans le crayon.

A_{Tot} est la somme des masses molaires des molécules correspondant à une mole de noyaux lourds dans le combustible et est calculée à l'aide de l'équation 4.21. Pour cela, nous raisonnons sur un combustible composé de molécules de type : NLO_2 et MgO où NL est un noyau lourd. Dans cette formule, n_i est la proportion molaire de l'isotope i par rapport aux autres noyaux lourds, telle que la somme des n_i des noyaux lourds soit égale à un. La proportion molaire de matrice inerte est notée n_{MgO} et correspond au nombre de moles de MgO présentes dans le combustible pour une mole de noyaux lourds. Les paramètres A_i , A_O et A_{Mg} sont les masses molaires des isotopes ou éléments correspondants (oxygène ou magnésium).

$$A_{Tot} = \sum_i n_i \cdot A_i + (2 + n_{MgO}) \cdot A_O + A_{Mg} \cdot n_{MgO} \quad (4.21)$$

Ainsi à partir des expressions 4.19 à 4.21, l'équation 4.18 s'écrit :

$$\Phi = \frac{P_{MaxCrayon}}{[\langle E_f \rangle \cdot \sum_i N_i \cdot \langle \sigma_{fi} \rangle] \cdot \Gamma_{FF}} \quad (4.22)$$

Or, la puissance maximale des crayons a été déterminée à l'étape 4.7.2. Nous connaissons les sections efficaces de fission car elles ont été utilisées dans la partie 4.6, pour calculer le deuxième combustible à l'équilibre. Le facteur de forme Γ_{FF} a également été estimé dans la partie 4.7.1. De même, la puissance maximale d'utilisation des crayons $P_{MaxCrayon}$ a été obtenue lors des calculs couplant neutronique et thermo-hydraulique 4.7.2. Tous les paramètres étant connus, il est alors possible de calculer le flux neutronique dans le cœur.

Après avoir résolu l'ensemble de ces équations, nous connaissons la puissance et le flux neutronique des ADS de toutes les filières étudiées. Le tableau 4.22 récapitule l'ensemble des résultats obtenus.

Ils confirment clairement le lien entre la proportion de MgO dans le combustible et la puissance du cœur. La figure 4.35 montre les valeurs des puissances thermiques des réacteurs en fonction du nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds. Les résultats obtenus

Filière	$N_{MgO}(mol)$	Γ_{FF}	$\Phi (10^{15} \cdot n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1})$	P (GW)
REP-Na5-1	2.42	1.40	1.54	1.26
REP-Na5-3	3.55	1.46	2.02	1.40
REP-Na7-1	2.50	1.43	1.61	1.24
REP-Na7-3	3.59	1.41	2.11	1.46
SFR-Na5-1	3.22	1.42	1.81	1.39
SFR-Na5-3	3.46	1.40	1.96	1.44
SFR-Na7-1	3.21	1.42	1.83	1.41
SFR-Na7-3	3.5	1.42	1.95	1.43
REP-Pb3-1	1.40	1.66	0.88	0.65
REP-Pb3-3	2.28	1.63	1.35	0.85
REP-Pb5-1	1.53	1.73	0.91	0.66
REP-Pb5-3	2.49	1.59	1.48	0.91
SFR-Pb3-1	2.08	1.64	1.17	0.81
SFR-Pb3-3	2.28	1.65	1.27	0.84
SFR-Pb5-1	2.21	1.64	1.22	0.83
SFR-Pb5-3	2.47	1.62	1.37	0.89
REP-95Na5-1	2.81	1.82	1.36	1.08
REP-95Na5-3	4.09	1.76	1.92	1.29
SFR-95Na5-1	3.68	1.83	1.59	1.19
SFR-95Na5-3	3.95	1.77	1.77	1.27

Tableau 4.22: Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds N_{MgO} , facteur de forme Γ_{FF} , flux neutronique et puissance des ADS MUST pour les différentes filières.

avec un type de cœur (caloporteur et avec ou sans assemblage de contrôle) ont des puissances croissantes en fonction de la quantité de matrice inerte.

Nous pouvons remarquer l'importante différence entre les puissances des réacteurs refroidis au plomb et au sodium. Cet écart s'explique par plusieurs facteurs pénalisants. Tout d'abord, la puissance maximale par crayon est parfois plus faible pour les ADS à caloporteur Pb (tableau 4.21). Cela s'explique par une plus faible proportion de MgO, or nous avons calculé la puissance maximale des crayons en prenant en compte uniquement l'apport de la matrice à la conductivité thermique du combustible.

De plus, le nombre de crayons de combustible dans les réacteurs refroidis au plomb est

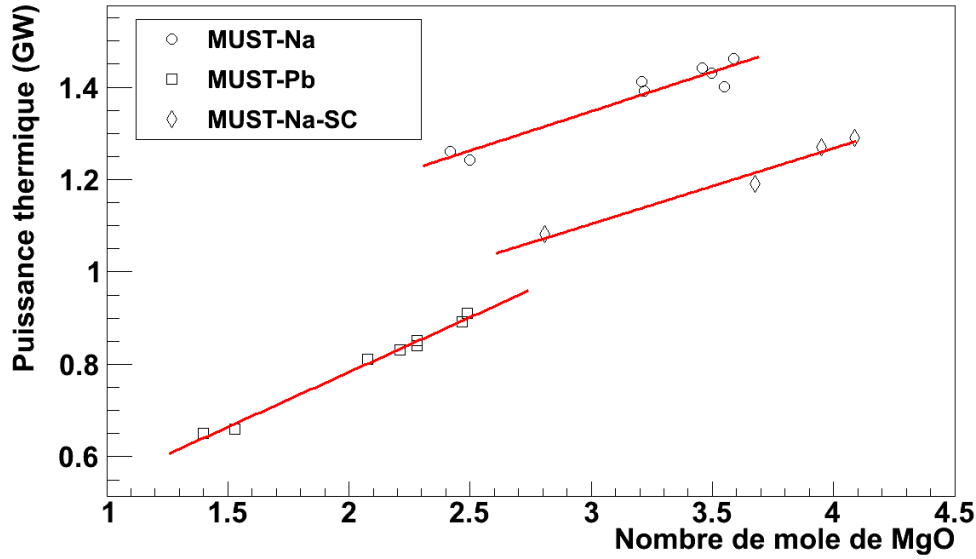


Figure 4.35: Puissance thermique des crayons en fonction du nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds. Les cercles et les carrés sont les valeurs obtenues pour les ADS MUST munis d'assemblages de contrôle à caloporteur sodium et plomb, et les losanges correspondent aux résultats des réacteurs sans assemblage de contrôle. Les droites sont les ajustements linéaires des valeurs par type d'ADS.

inférieur à celui des systèmes utilisant du sodium. Les premiers contiennent, en effet, 44 785 crayons et les ADS au sodium 57 723.

Or, nous avons vu que la puissance du réacteur est proportionnelle au nombre de crayons contenus dans le cœur (équation 4.17). Donc, par cette seule différence, même si les autres caractéristiques des ADS à caloporteur plomb et sodium était identiques, la puissance des premiers serait inférieure d'environ 22 %.

L'autre paramètre déterminant est le facteur de forme. Il est plus grand pour un système refroidi au plomb. Or, d'après l'équation 4.17, la puissance est inversement proportionnelle à Γ_{FF} donc une valeur supérieure pour les ADS refroidis au plomb est pénalisante. Les valeurs moyennes des facteurs de forme obtenus pour les réacteurs à caloporteur sodium et plomb sont respectivement 1.42 et 1.65. Donc, si l'ensemble des autres paramètres était identique, les ADS refroidis au plomb auraient une puissance près de 14 % inférieure à celle des systèmes au sodium.

Pour les ADS MUST non munis d'assemblage de contrôle, l'ajout de MgO nécessaire à l'obtention d'un k_{eff} de 0.95 conduit à une conductivité thermique plus élevée. En conséquence, la puissance que l'on peut injecter dans un crayon est supérieure au cas des ADS MUST avec des assemblages de contrôle, pour la même température de fonctionnement.

Parallèlement, la dégradation du facteur de forme, due à la sous-criticité plus importante

conduit à diminuer la puissance totale. Ce dernier effet étant dominant, la puissance des concepts sans assemblage de contrôle est plus faible que les systèmes munis d'assemblages de contrôle de filière équivalente.

Par exemple, la puissance maximale d'un crayon est égale à 32.09 kW pour un ADS sans assemblage de contrôle transmutant seulement l'américium produit en REP, et la puissance thermique est de 1.08 GW (filière REP-95Na5-1). En comparaison, le réacteur de la filière équivalente (REP-Na5-1) muni d'assemblages de contrôle, a une puissance maximale par crayon de 30.51 kW mais une puissance de 1.26 GW.

Enfin, il est intéressant d'observer que les scénarios de transmutation de tous les actinides mineurs aboutissent à des puissances supérieures à celles des scénarios équivalents transmutant uniquement l'américium. L'écart est très net pour les premières strates composées de REP. Ce constat est lié aux puissances maximales des crayons dont nous avons remarqué l'écart suivant la stratégie de transmutation adoptée.

4.8 Détermination de l'intensité du faisceau

L'intensité du faisceau de protons est déterminée par rapport aux crayons soumis au flux neutronique le plus important et donc à la puissance maximale (P_{MaxC}) en début de cycle que nous avons calculée précédemment lors de l'étape 4.7.2. Ces derniers se trouvent au plus près des cibles de spallation et sur l'axe dirigé vers le centre du cœur, comme le montre le schéma 4.36. Il y a par conséquent un crayon par cible correspondant à cette description et donc trois crayons au total dont la puissance injectée est de P_{MaxC} .

Pour déterminer l'intensité (I), une simulation est effectuée avec le code MCNPX. Une source de protons de 1 GeV monodirectionnelle dirigée vers les trois cibles de spallation est utilisée avec une équirépartition des protons par cible. Le combustible du réacteur est le deuxième combustible à l'équilibre 4.6.

L'énergie déposée par proton source dans chacun des trois crayons soumis au flux maximal est extraite des résultats de la simulation avec une erreur relative inférieure à 0.02. La moyenne des énergies déposées dans ces trois crayons E_{DepC} est alors calculée afin de résoudre l'équation 4.23. Dans cette dernière, E_{DepC} est en $MeV \cdot proton^{-1}$ et P_{MaxC} est la puissance maximale de fonctionnement du crayon en kW obtenue dans la partie 4.7.2. L'intensité I est alors obtenue en milliampère.

$$I = \frac{P_{MaxC}}{E_{DepC}} \quad (4.23)$$

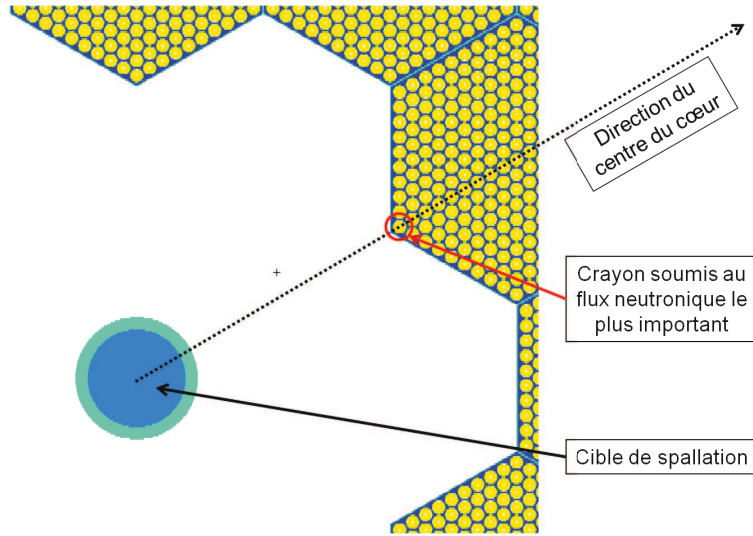


Figure 4.36: Schéma montrant la position d'un des crayons soumis au flux neutronique le plus élevé.

L'incertitude statistique dépendant uniquement de l'erreur faite sur le calcul de E_{DepC} est définie par :

$$\Delta I = I \cdot \frac{\Delta E_{DepC}}{E_{DepC}} \quad (4.24)$$

Le tableau 4.23 récapitule les valeurs de E_{DepC} et I obtenues pour les différentes filières.

Nous observons une grande différence entre l'intensité du faisceau principal des ADS MUST à caloporteur plomb et à caloporteur sodium. Pour le premier, l'intensité est comprise entre 16 et 24 mA, suivant les filières. Les ADS MUST refroidis par du sodium et munis d'assemblages de contrôle ont une intensité comprise entre 36 et 50 mA. Et pour ceux non munis d'assemblage de contrôle, I est dans un intervalle de 60 à 81 mA.

Ces écarts sont liés au fort contraste des énergies déposées (E_{DepC}) suivant le caloporteur de l'ADS. Elles sont en effet très inférieures pour les réacteurs refroidis au sodium. Cette remarque explique les écarts d'intensités obtenus pour des puissances maximales équivalentes entre des systèmes utilisant des caloporteurs différents.

L'écart entre la valeur de l'énergie déposée dans un crayon de combustible d'un réacteur à caloporteur plomb et d'un concept au sodium est corrélé au nombre de crayons dans les cœurs. Il y a en effet respectivement 44785 crayons dans le premier type d'ADS et 57 723 dans le second lorsqu'il contient des assemblages de contrôle. Or, le coefficient de multiplication des deux réacteurs est de 0.97, et ils ont des taux de fuites et de captures neutroniques comparables. Le nombre de fissions dans le combustible est donc équivalent dans les deux systèmes. Par conséquent, il y a plus de fissions dans un crayon d'ADS à caloporteur plomb et donc une énergie déposée supérieure.

Filière	$E_{DepC} (MeV \cdot proton^{-1})$	$I (mA)$	$E_T (GeV \cdot proton^{-1})$	$P_{th} (GW)$
REP-Na5-1	0.85	36.00 ± 0.72	33.5	1.21
REP-Na5-3	0.72	48.98 ± 0.98	29.8	1.46
REP-Na7-1	0.74	41.28 ± 0.83	27.2	1.12
REP-Na7-3	0.72	49.50 ± 0.99	28.8	1.43
SFR-Na5-1	0.73	46.88 ± 0.94	28.6	1.34
SFR-Na5-3	0.73	47.85 ± 0.96	29.1	1.39
SFR-Na7-1	0.76	45.76 ± 0.92	29.4	1.34
SFR-Na7-3	0.72	49.21 ± 0.99	27.9	1.37
REP-Pb3-1	1.50	16.06 ± 0.33	41.3	0.66
REP-Pb3-3	1.29	23.89 ± 0.48	35.9	0.86
REP-Pb5-1	1.42	18.02 ± 0.36	36.8	0.66
REP-Pb5-3	1.34	24.11 ± 0.49	39.1	0.94
SFR-Pb3-1	1.37	21.69 ± 0.44	37.7	0.82
SFR-Pb3-3	1.36	22.86 ± 0.46	38.1	0.87
SFR-Pb5-1	1.38	22.04 ± 0.44	38.3	0.84
SFR-Pb5-3	1.33	24.09 ± 0.48	37.1	0.89
REP-95Na5-1	0.53	60.63 ± 1.2	17.1	1.03
REP-95Na5-3	0.46	80.80 ± 1.62	15.7	1.27
SFR-95Na5-1	0.49	72.36 ± 1.45	16.4	1.19
SFR-95Na5-3	0.49	75.78 ± 1.52	16.5	1.25

Tableau 4.23: Moyennes des énergies déposées dans les trois crayons soumis au flux maximal $E_{DepC} (MeV \cdot proton^{-1})$, intensité du faisceau de proton principal I , énergie déposée dans le cœur $E_T (GeV \cdot proton^{-1})$ et puissance thermique P_{th} des différentes filières. Les erreurs statistiques relatives de E_{DepC} et E_T sont respectivement de l'ordre de 0.02 % et inférieures à 0.01 %. L'erreur sur I donnée dans le tableau est uniquement liée à l'erreur statistique de E_{DepC} .

Les différences entre les intensités obtenues pour des réacteurs refroidis au sodium munis d'assemblages de contrôle et ceux n'en n'ayant pas, sont également liées à E_{DepC} . Cette valeur est de l'ordre de $0.5 MeV \cdot proton^{-1}$ pour un système sans assemblage de contrôle et est supérieure à 0.7 pour les réacteurs avec des assemblages de contrôle. L'intensité étant inversement proportionnelle à cette valeur, I est donc plus grand pour les réacteurs sans assemblage de contrôle.

Cet écart d'énergie déposée par crayon est corrélée au coefficient de multiplication. Un ADS

sans assemblage de contrôle a un k_{eff} de 0.95. Le nombre de fissions dans un crayon de combustible est plus faible dans ces réacteurs, pour obtenir un coefficient de multiplication inférieur à 0.97. Ainsi, l'énergie déposée dans les crayons d'un ADS sans assemblage de contrôle est donc plus faible que dans ceux des ADS munis d'assemblages de contrôle.

La figure 4.37 montre les intensités obtenues par types de systèmes. Les carrés correspondent aux résultats des réacteurs à caloporteur plomb, les cercles à ceux refroidis au sodium munis d'assemblage de contrôle et les losanges ceux sans assemblage de contrôle. Nous pouvons remarquer que, pour chacun des trois types de système, l'intensité est proportionnelle à la quantité de MgO. Plus la quantité de matrice inerte est élevée plus l'intensité du faisceau principal est importante.

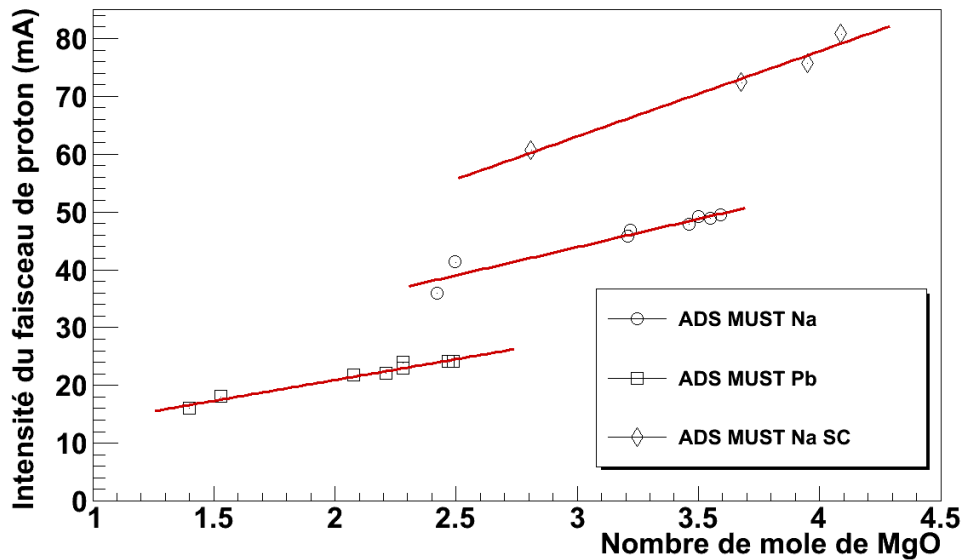


Figure 4.37: Intensité du faisceau principal de protons en fonction du nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds. Les carrés correspondent aux résultats obtenus avec un ADS refroidi par du plomb, les cercles et les losanges avec des systèmes à caloporteur sodium respectivement munis d'assemblages de contrôle et sans assemblage de contrôle. Les droites sont des ajustements linéaires de chacun des types de points.

Une nouvelle fois, nous remarquons l'importance de la stratégie de transmutation. Pour une filière dont l'ADS MUST transmute seulement l'américium, l'intensité du faisceau est plus faible comparé à celle de la filière équivalente où tous les actinides mineurs sont dédiés à la transmutation.

Ces écarts sont liés aux valeurs de $P_{MaxCrayon}$ plus faibles avec la première stratégie de transmutation. L'intensité est proportionnelle à $P_{MaxCrayon}$ donc I est également plus petit que pour la filière équivalente transmutant tous les actinides mineurs.

La puissance maximale étant corrélée à la proportion de matrice inerte (voire partie 4.7.2), l'intensité l'est aussi. Cette observation est en accord avec la figure 4.37.

Avec le même calcul réalisé par le programme MCNPX, nous déterminons l'énergie déposée E_T dans l'ensemble du cœur. Le nombre de protons sources simulés permet d'obtenir une déviation standard sur E_T de l'ordre de 0.01 %. Ainsi avec l'équation 4.25, nous pouvons recalculer par une autre méthode, la puissance du système P_{th} (en kW) en fonction de l'intensité I (en mA) et de l'énergie totale déposée dans le cœur E_T en $MeV \cdot proton^{-1}$.

$$P_{th} = I \cdot E_T \quad (4.25)$$

L'expression 4.26 permet de calculer l'erreur statistique faite sur P_{th} , elle prend en compte l'erreur statistique faite sur le calcul de E_T et ΔI calculée avec 4.24.

$$\Delta P_{th} = \sqrt{(\Delta I \cdot E_T)^2 + (I \cdot \Delta E_T)^2} \quad (4.26)$$

Le tableau 4.23 récapitule les résultats obtenus pour les différentes filières. Les erreurs statistiques de P_{th} sont de l'ordre de 2 %.

Tout d'abord, l'énergie déposée dans le cœur par proton source dépend du type de système. Les valeurs de E_T pour un ADS à caloporteur plomb est compris entre 35.9 et 41.3 $GeV \cdot proton^{-1}$. Pour un réacteur refroidi au sodium avec des assemblages de contrôle, les résultats sont de 27.2 à 33.5 $GeV \cdot proton^{-1}$ et pour ceux sans assemblage de contrôle de 15.7 à 17.1 $GeV \cdot proton^{-1}$.

Les valeurs de P_{th} sont de l'ordre de 1.1 à 1.5 GW pour un réacteur à caloporteur sodium muni d'assemblages de contrôle et sont comprises entre 1 et 1.3 GW pour ceux sans assemblage de contrôle. Les résultats sont donc relativement proches pour les deux types de réacteurs. La puissance étant proportionnelle à I et E_T , l'écart entre les énergies déposées dans les cœurs des deux systèmes est compensé par une intensité du faisceau de protons plus élevée pour les réacteurs sans assemblage de contrôle.

Les résultats, pour les filières dont l'ADS est refroidi au plomb, sont très inférieurs avec des puissances thermiques allant de 660 MW à 940 MW. Le fort dépôt d'énergie dans ce type de réacteur ne compense donc pas la faible intensité du faisceau principal de proton.

Nous pouvons comparer les valeurs des puissances obtenues avec cette méthode et celles déterminées dans la partie 4.7.3. Les écarts de ces résultats sont inférieurs à 5 %. Les puissances thermiques avec les deux méthodes sont donc cohérentes.

4.9 Troisième combustible à l'équilibre

Le combustible à l'équilibre est affiné une dernière fois à l'aide du flux neutronique calculé à l'étape 4.7.3.

Pour cela, un nouveau calcul est effectué avec le code ACDC afin d'obtenir le vecteur isotopique à l'équilibre. Le vecteur de noyaux lourds de départ est celui du deuxième combustible (tableaux 4.15, 4.16, 4.17 et 4.18). Nous réutilisons les mêmes paramètres que dans la partie où nous avons déterminé le deuxième combustible à l'équilibre 4.6. Par contre, le flux est fixé à la valeur de la filière étudiée à partir du tableau 4.22. C'est le seul paramètre qui diffère avec le calcul du deuxième vecteur de noyaux lourds de la partie 4.6.

Ensuite, la quantité de matrice inerte est ajustée en réalisant des simulations avec le programme MCNPX, pour différentes proportions de MgO. À la différence des optimisations précédentes du combustible, pour les ADS MUST munis d'assemblages de contrôle, ces derniers sont insérés de 20 cm.

Le combustible à l'équilibre est déterminé pour un k_{eff} proche 0.97 dans cette configuration. Pour les réacteurs sans assemblage de contrôle, le coefficient de multiplication est d'environ 0.95. Les tableaux 4.24, 4.25, 4.26, 4.27 et 4.28 récapitulent les compositions des combustibles à l'équilibre pour les différentes filières.

La puissance du cœur a été déterminée avec le deuxième combustible. Or, cette valeur est très fortement dépendante de la quantité de matrice inerte composant le combustible car elle est le principal contributeur à son refroidissement. Par conséquent, une diminution de la proportion de MgO dans le combustible final par rapport au précédent, impliquerait un risque de dépassement de la température maximale d'utilisation des crayons.

Pour cette raison, dans certains cas, la proportion de MgO est laissée identique à la précédente même si le coefficient de multiplicité est inférieur à 0.97 ou 0.95 dans les cas sans assemblage de contrôle. Mais généralement, les quantités nécessaires pour les différentes filières sont soit égales, soit supérieures. Le seuil de température appliqué lors des calculs de thermo-hydraulique est donc ainsi respecté voir même amélioré lors du calcul de ce troisième combustible à l'équilibre.

La figure 4.38 représente le rapport entre les proportions isotopiques de noyaux lourds du troisième combustible par le deuxième combustible à l'équilibre, pour les filières transmutant les actinides mineurs issus de REP au cours d'irradiation de 5 ans. Le seul paramètre utilisé par le code ACDC ayant changé entre les deux déterminations de vecteur isotopique à l'équilibre est le flux neutronique. Il est égale à $10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour obtenir le deuxième combustible et correspond aux valeurs du tableau 4.22 pour le troisième combustible.

Isotopes		REP-Na5-1	REP-Na5-3	REP-Na7-1	REP-Na7-3
<i>MgO</i> (mol)		2.54	3.94	2.5	3.77
Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds	²³³ U	$2.115 \cdot 10^{-8}$	$3.843 \cdot 10^{-7}$	$1.896 \cdot 10^{-8}$	$3.076 \cdot 10^{-7}$
	²³⁴ U	$8.179 \cdot 10^{-2}$	$5.766 \cdot 10^{-2}$	$6.515 \cdot 10^{-2}$	$4.496 \cdot 10^{-2}$
	²³⁵ U	$1.272 \cdot 10^{-2}$	$9.471 \cdot 10^{-3}$	$9.999 \cdot 10^{-3}$	$7.126 \cdot 10^{-3}$
	²³⁶ U	$1.118 \cdot 10^{-2}$	$9.552 \cdot 10^{-3}$	$8.809 \cdot 10^{-3}$	$7.031 \cdot 10^{-3}$
	²³⁸ U	$1.483 \cdot 10^{-8}$	$2.943 \cdot 10^{-8}$	$1.373 \cdot 10^{-8}$	$2.182 \cdot 10^{-8}$
	²³⁷ Np	$1.075 \cdot 10^{-3}$	$9.347 \cdot 10^{-2}$	$1.125 \cdot 10^{-3}$	$9.985 \cdot 10^{-2}$
	²³⁸ Pu	$1.539 \cdot 10^{-1}$	$1.419 \cdot 10^{-1}$	$1.509 \cdot 10^{-1}$	$1.339 \cdot 10^{-1}$
	²³⁹ Pu	$4.071 \cdot 10^{-2}$	$4.172 \cdot 10^{-2}$	$4.077 \cdot 10^{-2}$	$4.005 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁰ Pu	$7.898 \cdot 10^{-2}$	$1.542 \cdot 10^{-1}$	$8.222 \cdot 10^{-2}$	$1.361 \cdot 10^{-1}$
	²⁴¹ Pu	$4.503 \cdot 10^{-3}$	$1.084 \cdot 10^{-2}$	$5.060 \cdot 10^{-3}$	$9.892 \cdot 10^{-3}$
	²⁴² Pu	$2.464 \cdot 10^{-3}$	$6.883 \cdot 10^{-3}$	$2.833 \cdot 10^{-3}$	$6.290 \cdot 10^{-3}$
	²⁴¹ Am	$3.341 \cdot 10^{-1}$	$2.012 \cdot 10^{-1}$	$3.497 \cdot 10^{-1}$	$2.187 \cdot 10^{-1}$
	^{242m} Am	$1.287 \cdot 10^{-2}$	$7.690 \cdot 10^{-3}$	$1.255 \cdot 10^{-2}$	$7.424 \cdot 10^{-3}$
	²⁴³ Am	$2.657 \cdot 10^{-1}$	$1.478 \cdot 10^{-1}$	$2.709 \cdot 10^{-1}$	$1.592 \cdot 10^{-1}$
	²⁴² Cm	$3.222 \cdot 10^{-5}$	$2.015 \cdot 10^{-5}$	$3.141 \cdot 10^{-5}$	$1.938 \cdot 10^{-5}$
	²⁴³ Cm	—	$6.900 \cdot 10^{-4}$	—	$7.457 \cdot 10^{-4}$
	²⁴⁴ Cm	—	$8.105 \cdot 10^{-2}$	—	$9.042 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁵ Cm	—	$2.257 \cdot 10^{-2}$	—	$2.454 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁶ Cm	—	$1.160 \cdot 10^{-2}$	—	$1.201 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁷ Cm	—	$1.758 \cdot 10^{-3}$	—	$1.797 \cdot 10^{-3}$

Tableau 4.24: Troisième combustible à l'équilibre des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et pour les autres noyaux proportion isotopique dans une mole de noyaux lourds.

Isotopes		SFR-Na5-1	SFR-Na5-3	SFR-Na7-1	SFR-Na7-3
<i>MgO</i> (mol)		3.33	3.72	3.21	3.51
Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds	²³³ U	$2.282 \cdot 10^{-8}$	$3.147 \cdot 10^{-7}$	$2.117 \cdot 10^{-8}$	$2.547 \cdot 10^{-7}$
	²³⁴ U	$9.312 \cdot 10^{-2}$	$8.078 \cdot 10^{-2}$	$7.602 \cdot 10^{-2}$	$6.666 \cdot 10^{-2}$
	²³⁵ U	$1.478 \cdot 10^{-2}$	$1.297 \cdot 10^{-2}$	$1.183 \cdot 10^{-2}$	$1.050 \cdot 10^{-2}$
	²³⁶ U	$1.278 \cdot 10^{-2}$	$1.178 \cdot 10^{-2}$	$1.021 \cdot 10^{-2}$	$9.488 \cdot 10^{-3}$
	²³⁸ U	$8.757 \cdot 10^{-9}$	$1.592 \cdot 10^{-8}$	$7.961 \cdot 10^{-9}$	$1.307 \cdot 10^{-8}$
	²³⁷ Np	$1.417 \cdot 10^{-3}$	$7.101 \cdot 10^{-2}$	$1.501 \cdot 10^{-3}$	$7.264 \cdot 10^{-2}$
	²³⁸ Pu	$2.075 \cdot 10^{-1}$	$1.937 \cdot 10^{-1}$	$2.004 \cdot 10^{-1}$	$1.862 \cdot 10^{-1}$
	²³⁹ Pu	$5.626 \cdot 10^{-2}$	$5.445 \cdot 10^{-2}$	$5.562 \cdot 10^{-2}$	$5.370 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁰ Pu	$4.743 \cdot 10^{-2}$	$8.587 \cdot 10^{-2}$	$4.839 \cdot 10^{-2}$	$7.930 \cdot 10^{-2}$
	²⁴¹ Pu	$3.108 \cdot 10^{-3}$	$5.886 \cdot 10^{-3}$	$3.337 \cdot 10^{-3}$	$5.664 \cdot 10^{-3}$
	²⁴² Pu	$1.780 \cdot 10^{-3}$	$3.532 \cdot 10^{-3}$	$1.938 \cdot 10^{-3}$	$3.450 \cdot 10^{-3}$
	²⁴¹ Am	$4.403 \cdot 10^{-1}$	$3.398 \cdot 10^{-1}$	$4.666 \cdot 10^{-1}$	$3.652 \cdot 10^{-1}$
	^{242m} Am	$1.355 \cdot 10^{-2}$	$1.037 \cdot 10^{-2}$	$1.262 \cdot 10^{-2}$	$9.699 \cdot 10^{-3}$
	²⁴³ Am	$1.079 \cdot 10^{-1}$	$8.191 \cdot 10^{-2}$	$1.115 \cdot 10^{-1}$	$8.608 \cdot 10^{-2}$
	²⁴² Cm	$3.392 \cdot 10^{-5}$	$2.957 \cdot 10^{-5}$	$3.160 \cdot 10^{-5}$	$2.856 \cdot 10^{-5}$
	²⁴³ Cm	—	$6.345 \cdot 10^{-4}$	—	$6.277 \cdot 10^{-4}$
	²⁴⁴ Cm	—	$3.520 \cdot 10^{-2}$	—	$3.798 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁵ Cm	—	$7.596 \cdot 10^{-3}$	—	$8.077 \cdot 10^{-3}$
	²⁴⁶ Cm	—	$3.882 \cdot 10^{-3}$	—	$4.141 \cdot 10^{-3}$
	²⁴⁷ Cm	—	$5.745 \cdot 10^{-4}$	—	$6.106 \cdot 10^{-4}$

Tableau 4.25: Troisième combustible à l'équilibre des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et pour les autres noyaux proportion isotopique dans une mole de noyaux lourds.

Isotopes		REP-Pb3-1	REP-Pb3-3	REP-Pb5-1	REP-Pb5-3
<i>MgO</i> (mol)		1.4	2.48	1.53	2.75
Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds	²³³ U	$4.080 \cdot 10^{-8}$	$8.938 \cdot 10^{-7}$	$3.547 \cdot 10^{-8}$	$5.666 \cdot 10^{-7}$
	²³⁴ U	$1.606 \cdot 10^{-1}$	$1.132 \cdot 10^{-1}$	$1.268 \cdot 10^{-1}$	$8.014 \cdot 10^{-2}$
	²³⁵ U	$2.472 \cdot 10^{-2}$	$1.849 \cdot 10^{-2}$	$1.946 \cdot 10^{-2}$	$1.289 \cdot 10^{-2}$
	²³⁶ U	$2.015 \cdot 10^{-2}$	$2.000 \cdot 10^{-2}$	$1.729 \cdot 10^{-2}$	$1.361 \cdot 10^{-2}$
	²³⁸ U	$4.201 \cdot 10^{-8}$	$5.856 \cdot 10^{-8}$	$3.420 \cdot 10^{-8}$	$4.565 \cdot 10^{-8}$
	²³⁷ Np	$9.472 \cdot 10^{-4}$	$9.228 \cdot 10^{-2}$	$9.920 \cdot 10^{-4}$	$9.262 \cdot 10^{-2}$
	²³⁸ Pu	$1.190 \cdot 10^{-1}$	$1.277 \cdot 10^{-1}$	$1.335 \cdot 10^{-1}$	$1.362 \cdot 10^{-1}$
	²³⁹ Pu	$3.147 \cdot 10^{-2}$	$3.568 \cdot 10^{-2}$	$3.487 \cdot 10^{-2}$	$3.839 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁰ Pu	$7.284 \cdot 10^{-2}$	$1.902 \cdot 10^{-1}$	$8.004 \cdot 10^{-2}$	$1.743 \cdot 10^{-1}$
	²⁴¹ Pu	$2.359 \cdot 10^{-3}$	$8.979 \cdot 10^{-3}$	$3.252 \cdot 10^{-3}$	$1.017 \cdot 10^{-2}$
	²⁴² Pu	$3.049 \cdot 10^{-3}$	$6.189 \cdot 10^{-3}$	$3.082 \cdot 10^{-3}$	$6.816 \cdot 10^{-3}$
	²⁴¹ Am	$2.944 \cdot 10^{-1}$	$1.777 \cdot 10^{-1}$	$3.083 \cdot 10^{-1}$	$1.911 \cdot 10^{-1}$
	^{242m} Am	$1.119 \cdot 10^{-2}$	$7.202 \cdot 10^{-3}$	$1.184 \cdot 10^{-2}$	$7.501 \cdot 10^{-3}$
	²⁴³ Am	$2.593 \cdot 10^{-1}$	$1.333 \cdot 10^{-1}$	$2.605 \cdot 10^{-1}$	$1.428 \cdot 10^{-1}$
	²⁴² Cm	$2.779 \cdot 10^{-5}$	$1.876 \cdot 10^{-5}$	$2.940 \cdot 10^{-5}$	$1.950 \cdot 10^{-5}$
	²⁴³ Cm	—	$3.206 \cdot 10^{-4}$	—	$4.429 \cdot 10^{-4}$
	²⁴⁴ Cm	—	$4.619 \cdot 10^{-2}$	—	$6.416 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁵ Cm	—	$1.386 \cdot 10^{-2}$	—	$1.793 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁶ Cm	—	$7.639 \cdot 10^{-3}$	—	$9.656 \cdot 10^{-3}$
	²⁴⁷ Cm	—	$1.079 \cdot 10^{-3}$	—	$1.377 \cdot 10^{-3}$

Tableau 4.26: Troisième combustible à l'équilibre des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et pour les autres noyaux proportion isotopique dans une mole de noyaux lourds.

Isotopes		SFR-Pb3-1	SFR-Pb3-3	SFR-Pb5-1	SFR-Pb5-3
<i>MgO</i> (mol)		2.13	2.43	2.28	2.68
Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds	²³³ U	$4.045 \cdot 10^{-8}$	$8.180 \cdot 10^{-7}$	$3.454 \cdot 10^{-8}$	$5.003 \cdot 10^{-7}$
	²³⁴ U	$1.771 \cdot 10^{-1}$	$1.568 \cdot 10^{-1}$	$1.352 \cdot 10^{-1}$	$1.154 \cdot 10^{-1}$
	²³⁵ U	$2.821 \cdot 10^{-2}$	$2.542 \cdot 10^{-2}$	$2.124 \cdot 10^{-2}$	$1.845 \cdot 10^{-2}$
	²³⁶ U	$2.441 \cdot 10^{-2}$	$2.406 \cdot 10^{-2}$	$1.885 \cdot 10^{-2}$	$1.748 \cdot 10^{-2}$
	²³⁸ U	$3.020 \cdot 10^{-8}$	$3.877 \cdot 10^{-8}$	$2.088 \cdot 10^{-8}$	$2.912 \cdot 10^{-8}$
	²³⁷ Np	$1.241 \cdot 10^{-3}$	$7.805 \cdot 10^{-2}$	$1.321 \cdot 10^{-3}$	$7.353 \cdot 10^{-2}$
	²³⁸ Pu	$1.752 \cdot 10^{-1}$	$1.679 \cdot 10^{-1}$	$1.919 \cdot 10^{-1}$	$1.831 \cdot 10^{-1}$
	²³⁹ Pu	$4.604 \cdot 10^{-2}$	$4.558 \cdot 10^{-2}$	$5.074 \cdot 10^{-2}$	$5.025 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁰ Pu	$4.154 \cdot 10^{-2}$	$1.004 \cdot 10^{-1}$	$4.602 \cdot 10^{-2}$	$9.543 \cdot 10^{-2}$
	²⁴¹ Pu	$1.736 \cdot 10^{-3}$	$4.527 \cdot 10^{-3}$	$2.361 \cdot 10^{-3}$	$5.336 \cdot 10^{-3}$
	²⁴² Pu	$2.553 \cdot 10^{-3}$	$3.750 \cdot 10^{-3}$	$2.481 \cdot 10^{-3}$	$3.981 \cdot 10^{-3}$
	²⁴¹ Am	$3.856 \cdot 10^{-1}$	$2.835 \cdot 10^{-1}$	$4.106 \cdot 10^{-1}$	$3.117 \cdot 10^{-1}$
	^{242m} Am	$1.297 \cdot 10^{-2}$	$9.734 \cdot 10^{-3}$	$1.332 \cdot 10^{-2}$	$1.018 \cdot 10^{-2}$
	²⁴³ Am	$1.034 \cdot 10^{-1}$	$7.334 \cdot 10^{-2}$	$1.060 \cdot 10^{-1}$	$7.820 \cdot 10^{-2}$
	²⁴² Cm	$3.220 \cdot 10^{-5}$	$2.622 \cdot 10^{-5}$	$3.307 \cdot 10^{-5}$	$2.802 \cdot 10^{-5}$
	²⁴³ Cm	—	$2.332 \cdot 10^{-4}$	—	$3.321 \cdot 10^{-4}$
	²⁴⁴ Cm	—	$1.999 \cdot 10^{-2}$	—	$2.737 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁵ Cm	—	$4.185 \cdot 10^{-3}$	—	$5.706 \cdot 10^{-3}$
	²⁴⁶ Cm	—	$2.181 \cdot 10^{-3}$	—	$3.031 \cdot 10^{-3}$
	²⁴⁷ Cm	—	$3.047 \cdot 10^{-4}$	—	$4.277 \cdot 10^{-4}$

Tableau 4.27: Troisième combustible à l'équilibre des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et pour les autres noyaux proportion isotopique dans une mol de noyaux lourds.

Isotopes		REP-95Na5-1	REP-95Na5-3	SFR-95Na5-1	SFR-95Na5-3
<i>MgO</i> (mol)		2.89	4.49	3.81	4.23
Proportion isotopique pour une mole de noyaux lourds	²³³ U	$2.383 \cdot 10^{-8}$	$4.039 \cdot 10^{-7}$	$2.588 \cdot 10^{-8}$	$3.520 \cdot 10^{-7}$
	²³⁴ U	$9.048 \cdot 10^{-2}$	$6.040 \cdot 10^{-2}$	$1.038 \cdot 10^{-1}$	$8.828 \cdot 10^{-2}$
	²³⁵ U	$1.418 \cdot 10^{-2}$	$9.967 \cdot 10^{-3}$	$1.664 \cdot 10^{-2}$	$1.429 \cdot 10^{-2}$
	²³⁶ U	$1.248 \cdot 10^{-2}$	$1.008 \cdot 10^{-2}$	$1.441 \cdot 10^{-2}$	$1.302 \cdot 10^{-2}$
	²³⁸ U	$1.584 \cdot 10^{-8}$	$3.094 \cdot 10^{-8}$	$9.376 \cdot 10^{-9}$	$1.738 \cdot 10^{-8}$
	²³⁷ Np	$1.056 \cdot 10^{-3}$	$9.298 \cdot 10^{-2}$	$1.386 \cdot 10^{-3}$	$7.119 \cdot 10^{-2}$
	²³⁸ Pu	$1.512 \cdot 10^{-1}$	$1.418 \cdot 10^{-1}$	$2.048 \cdot 10^{-1}$	$1.925 \cdot 10^{-1}$
	²³⁹ Pu	$4.013 \cdot 10^{-2}$	$4.168 \cdot 10^{-2}$	$5.560 \cdot 10^{-2}$	$5.410 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁰ Pu	$7.952 \cdot 10^{-2}$	$1.571 \cdot 10^{-1}$	$4.755 \cdot 10^{-2}$	$8.841 \cdot 10^{-2}$
	²⁴¹ Pu	$4.298 \cdot 10^{-3}$	$1.087 \cdot 10^{-2}$	$2.960 \cdot 10^{-3}$	$5.848 \cdot 10^{-3}$
	²⁴² Pu	$2.342 \cdot 10^{-3}$	$6.889 \cdot 10^{-3}$	$1.688 \cdot 10^{-3}$	$3.495 \cdot 10^{-3}$
	²⁴¹ Am	$3.283 \cdot 10^{-1}$	$1.994 \cdot 10^{-1}$	$4.308 \cdot 10^{-1}$	$3.325 \cdot 10^{-1}$
	^{242m} Am	$1.281 \cdot 10^{-2}$	$7.704 \cdot 10^{-3}$	$1.366 \cdot 10^{-2}$	$1.044 \cdot 10^{-2}$
	²⁴³ Am	$2.632 \cdot 10^{-1}$	$1.465 \cdot 10^{-1}$	$1.066 \cdot 10^{-1}$	$8.063 \cdot 10^{-2}$
	²⁴² Cm	$3.205 \cdot 10^{-5}$	$2.018 \cdot 10^{-5}$	$3.420 \cdot 10^{-5}$	$2.954 \cdot 10^{-5}$
	²⁴³ Cm	—	$6.595 \cdot 10^{-4}$	—	$5.631 \cdot 10^{-4}$
	²⁴⁴ Cm	—	$7.877 \cdot 10^{-2}$	—	$3.327 \cdot 10^{-2}$
	²⁴⁵ Cm	—	$2.204 \cdot 10^{-2}$	—	$7.184 \cdot 10^{-3}$
	²⁴⁶ Cm	—	$1.137 \cdot 10^{-2}$	—	$3.668 \cdot 10^{-3}$
	²⁴⁷ Cm	—	$1.722 \cdot 10^{-3}$	—	$5.428 \cdot 10^{-4}$

Tableau 4.28: Troisième combustible à l'équilibre des ADS MUST à caloporteur Na et sans assemblage de contrôle transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Nombre de mole de MgO pour une mole de noyaux lourds et pour les autres noyaux proportion isotopique dans une mole de noyaux lourds.

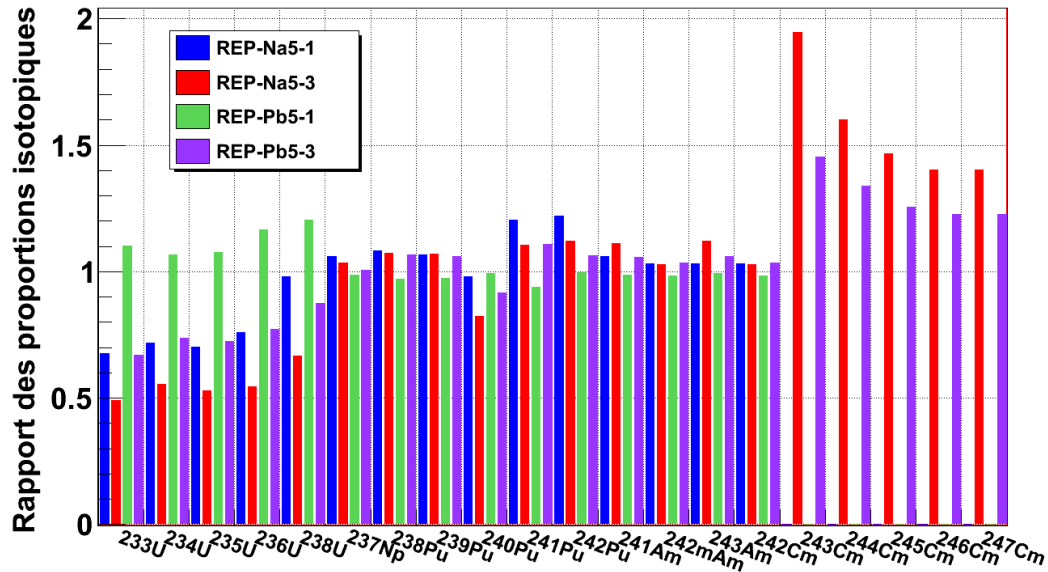


Figure 4.38: Rapport de la proportion isotopique molaire de noyaux lourds du combustible à l'équilibre sur celle du deuxième combustible.

Tout d'abord, les variations entre les deux vecteurs à l'équilibre de noyaux lourds sont bien plus faibles que lors du passage du premier combustible au deuxième. Les écarts dans ce cas sont assimilables à des réajustements de la composition précédente.

Nous constatons que les quantités des isotopes de l'américium, ainsi que le ^{237}Np , le ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu et ^{242}Cm changent peu d'une composition à l'autre.

Par contre, hormis le ^{242}Cm , les proportions de curium ont tendance à augmenter dans les filières cherchant à le transmuter. Les différences de variation des isotopes entre ces filières sont corrélées à la valeur du flux neutronique. Celle dont l'augmentation de plutonium est la plus importante correspond à un flux de $2.02 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Inversement, la variation la plus faible est obtenue avec un flux de $1.48 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

De même, les proportions de ^{241}Pu et ^{242}Pu augmentent dans les combustibles des filières dont le flux est supérieur à $1 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, la valeur utilisée pour calculer le deuxième combustible. C'est le cas de cinq des filières de la figure 4.38. La sixième dont le flux est égal à $0.91 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ a légèrement moins de ^{241}Pu dans le nouveau combustible que dans l'ancien.

Inversement la quantité d'uranium diminue dans presque toutes les filières. Les variations de compositions sont également liées à la valeur du flux neutronique. La proportion d'uranium augmente uniquement dans la seule filière pour laquelle le flux neutronique est inférieur au flux

utilisé pour le calcul du deuxième combustible à l'équilibre. Les autres filières ont un flux supérieur à $1 \cdot 10^{15} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ et plus la valeur est élevée plus la quantité d'uranium diminue.

Ces variations sont tout de même à relativiser car les proportions des isotopes d'uranium, de ^{241}Pu , de ^{242}P et de curium sont très faibles (3 % pour les plus abondants) sauf pour le ^{234}U dont la proportion molaire est de l'ordre de 10 % des noyaux lourds.

Ces observations montrent l'influence de la valeur du flux sur les vecteurs isotopiques de noyaux lourds à l'équilibre.

4.10 Bilan du dimensionnement des concepts d'ADS MUST

Pour terminer ce chapitre, nous allons faire un bilan des principales caractéristiques des réacteurs. Nous donnerons également quelques pistes d'études pour améliorer leur potentiel et des sujets à approfondir dans de futures recherches sur le développement des ADS MUST.

4.10.1 ADS MUST à caloporteur plomb

Une caractéristique importante des réacteurs sous-critiques est l'intensité du faisceau de protons. En effet, obtenir une forte intensité en continu et de manière stable est un défi technologique. Il est donc préférable d'avoir une intensité la plus faible possible pour les concepts étudiés.

Pour les ADS MUST refroidis au plomb, l'intensité du faisceau principal de protons est comprise entre 16 et 24 mA. Ces valeurs sont comparables à l'intensité utilisée pour le concept EFIT dont la source de protons a une intensité de 20 mA. C'est le point positif de l'ADS MUST à caloporteur plomb.

La puissance thermique des ADS MUST à caloporteur plomb est de l'ordre de 600 à 900 MW et donc inférieure à celle des ADS MUST à caloporteur sodium dont la puissance est supérieure à 1 GW. Même si la puissance de l'ADS MUST refroidi au plomb est entre 1.5 et 2.25 fois supérieure à celle du concept EFIT qui est de 400 MW, la puissance produite par cible de spallation est inférieure.

La faible puissance de ce type d'ADS MUST limite leur potentiel de transmutation. Il serait donc préférable de les optimiser dans de futures études. Nous avons notamment observé que les valeurs locales du flux neutronique sont moins homogènes par rapport aux ADS au sodium. C'est l'un des points pénalisant la puissance thermique du réacteur. Il est probablement possible en utilisant différentes zones de combustible, d'améliorer cette caractéristique, comme dans le concept EFIT.

4.10.2 ADS MUST à caloporteur sodium

L'intensité du faisceau principal de protons des ADS MUST à caloporteur sodium est un point négatif de ces concepts. Ses valeurs sont comprises entre 36 et 50 mA pour les systèmes avec des assemblages de contrôle et entre 60 et 80 mA pour ceux sans assemblage de contrôle. L'intensité du faisceau principal de protons est donc supérieure à celle du concept EFIT et demandera un fort travail de recherche et développement. Néanmoins, l'intensité par cible de spallation est inférieure à 20 mA. Les contraintes appliquées aux cibles sont donc inférieures à celles prévues pour le concept EFIT.

Par contre, les systèmes au sodium ont des puissances thermiques élevées. Un ADS MUST refroidi au sodium sans assemblage de contrôle a des puissances comprises entre 1 et 1.3 GW et s'il est muni d'assemblages de contrôle, elle est de 1.1 à 1.5 GW. Cela correspond à environ 250 à 500 MW par cible de spallation. La puissance légèrement plus faible des réacteurs sans assemblage de contrôle est liée à l'inhomogénéité des valeurs locales du flux neutronique. Il est certainement possible d'obtenir un flux plus uniforme dans le cœur en utilisant une approche hétérogène du combustible. Cependant ces valeurs de puissances permettent de transmuter de grandes quantités d'actinides mineurs et donc de diminuer le nombre d'ADS nécessaire pour la transmutation d'une même masse d'actinides mineurs.

Pour réaliser nos études de scénarios, nous utiliserons un ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle. Ainsi, nous nous affranchissons de la question de la tenue des assemblages de contrôle au cours d'une longue irradiation.

4.10.3 Axes de travail à approfondir

De nombreux points sont à étudier ou à approfondir lors de prochains travaux de recherches afin d'améliorer et de connaître plus en détail le potentiel du concept d'ADS MUST. Nous allons donner ici quelques axes de réflexions.

Premièrement, la cible de spallation et la source de protons associée peuvent certainement faire l'objet d'une optimisation. Les caractéristiques avec lesquelles les ADS MUST ont été dimensionnés, permettent d'avoir un apport de neutrons dans le cœur convenable. Mais une étude de dimensionnement approfondie de la cible et de l'énergie du proton incident pourrait définir les caractéristiques idéales pour alimenter le réacteur sous-critique.

Il serait également intéressant de suivre une approche hétérogène du combustible notamment pour les concepts à caloporteur plomb ou sans assemblage de contrôle. En utilisant différentes zones de combustible, il est certainement possible d'améliorer les valeurs locales du flux neutronique dans les parties où elles sont plus faibles avec un combustible homogène et par conséquent augmenter la puissance thermique du réacteur.

Une étude de thermo-hydraulique plus précise est aussi envisageable. Nous avons par exemple négligé la conductivité des noyaux lourds et, de ce fait, sous-estimé le potentiel de refroidisse-

ment des crayons. Les calculs effectués avec la classe BATH du code MURE sont également susceptibles d'être améliorés en utilisant des bases de données de sections efficaces plus précises en fonction de la température. Mais il est aussi envisageable d'utiliser le couplage des codes MURE et COBRA permettant de réaliser des études de thermo-hydraulique beaucoup plus fines.

Comme mentionné précédemment, ce travail vise à fournir des ordres de grandeurs du potentiel de transmutation d'un ADS de grande puissance. Mais, si ce potentiel est jugé intéressant, une estimation précise des incertitudes liées à chaque étape du dimensionnement permettrait de faire une analyse critique des résultats obtenus.

Enfin, parmi les pistes à explorer, il faudrait aussi étudier les limites d'utilisation des assemblages de contrôle sous irradiation comme par exemple la production de gaz risquant de détériorer les barres de contrôle. Le développement des ADS MUST avec des assemblages de contrôle est dépendant de la bonne tenue des barres de contrôle durant le cycle.

Chapitre 5

Scénarios double strate à l'équilibre de transmutation des actinides mineurs

Dans un premier temps, nous allons étudier l'évolution des cœurs dimensionnés dans la partie précédente. Les résultats obtenus permettent, tout d'abord, d'analyser l'évolution des différents isotopes au cours des cycles complets des réacteurs. Nous vérifierons l'équilibre des quantités de plutonium et d'uranium et estimerons le potentiel de transmutation des ADS MUST pour les différentes filières. Ensuite, nous examinerons le maintien de la sous-criticité du réacteur au cours de l'irradiation. À partir de la composition du combustible utilisé, la radiotoxicité et la puissance thermique des déchets produits seront également estimées. Enfin, nous comparerons deux scénarios à l'équilibre.

5.1 Évolution sur un cycle

5.1.1 Description de la simulation

L'évolution du combustible permet d'estimer le potentiel des ADS MUST pour la transmutation des actinides mineurs. Nous comparerons, dans cette partie, les compositions des combustibles neufs et en fin de cycle.

Pour chacune des filières dimensionnées dans le chapitre 4, une simulation d'évolution du combustible sur l'ensemble du cycle est réalisée avec le programme MURE. Les combustibles utilisés sont ceux recensés dans les tableaux 4.24 à 4.28 et les puissances thermiques dans le tableau 4.22.

Les calculs d'évolution sont effectués durant l'irradiation, puis les cinq ans de refroidissement et les deux ans de fabrication. Par contre, une approximation est faite pour l'étape de fabrication. Il est en effet difficile d'estimer le moment exact de séparation des différents noyaux et de la conception du nouveau combustible. Nous supposons donc, dans cette partie,

une séparation et une fabrication instantanées à la fin des deux ans de l'étape de préparation du combustible afin de simplifier les simulations.

Nous observerons donc deux phases dans les résultats de l'évolution : une irradiation de 3, 5 ou 7 ans suivie de 7 ans de décroissance.

L'hypothèse sur la fabrication du combustible a un impact très limité sur les scénarios transmutant tous les actinides mineurs car l'ensemble des noyaux lourds est recyclé.

Par contre, si seul l'américium est incinéré, le curium et le neptunium sont envoyés aux déchets après la séparation chimique. Alors, si cette étape est réalisée dès le début des deux ans, le nombre de noyaux de plutonium issus de la décroissance du curium sera plus faible. C'est, par exemple, le cas des ^{243}Cm et ^{244}Cm dont les décroissances produisent du ^{239}Pu et ^{240}Pu avec des périodes de 29.1 ans et de 18.1 ans.

Cependant, les proportions de ^{243}Cm dans le combustible sont de l'ordre du pour cent comparées à celles du ^{239}Pu , l'influence de cette hypothèse est donc relativement négligeable. Par contre, le rapport de la masse de ^{244}Cm sur celle de ^{240}Pu est de plusieurs dizaines de pour cent et en 2 ans environ 9 % des noyaux de ^{244}Cm se transforment en ^{240}Pu . Donc, l'approximation réalisée a un effet plus important sur les masses en fin de cycle de ces noyaux.

5.1.2 Uranium et plutonium

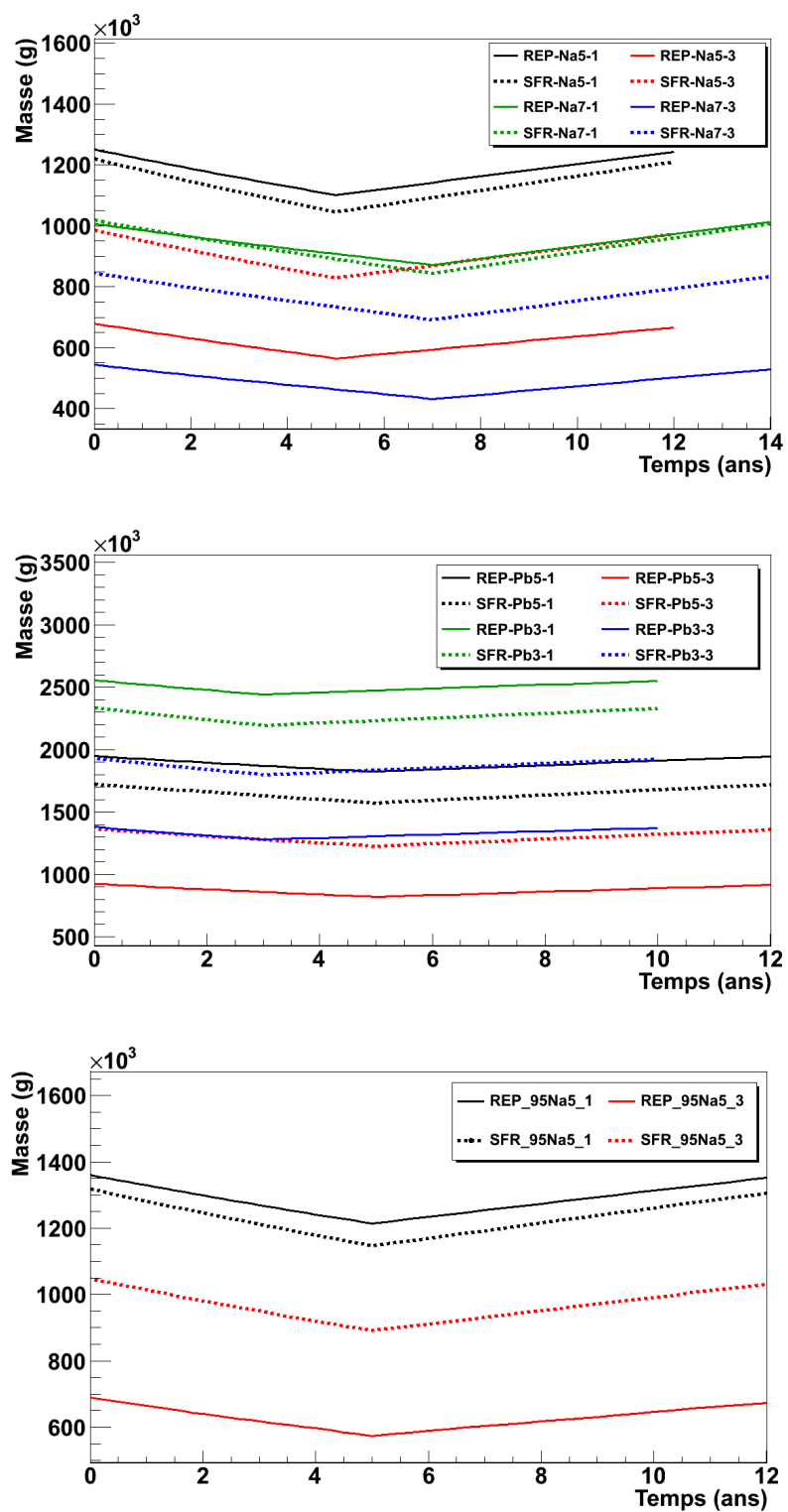
Il est tout d'abord intéressant de vérifier si l'uranium et le plutonium sont à l'équilibre. La régénération de ces noyaux rend le réacteur dépendant uniquement des actinides mineurs produits par la première strate. De plus, afin de valoriser le gain obtenu sur la radiotoxicité à long terme par la transmutation des actinides mineurs, le plutonium ne doit pas être produit.

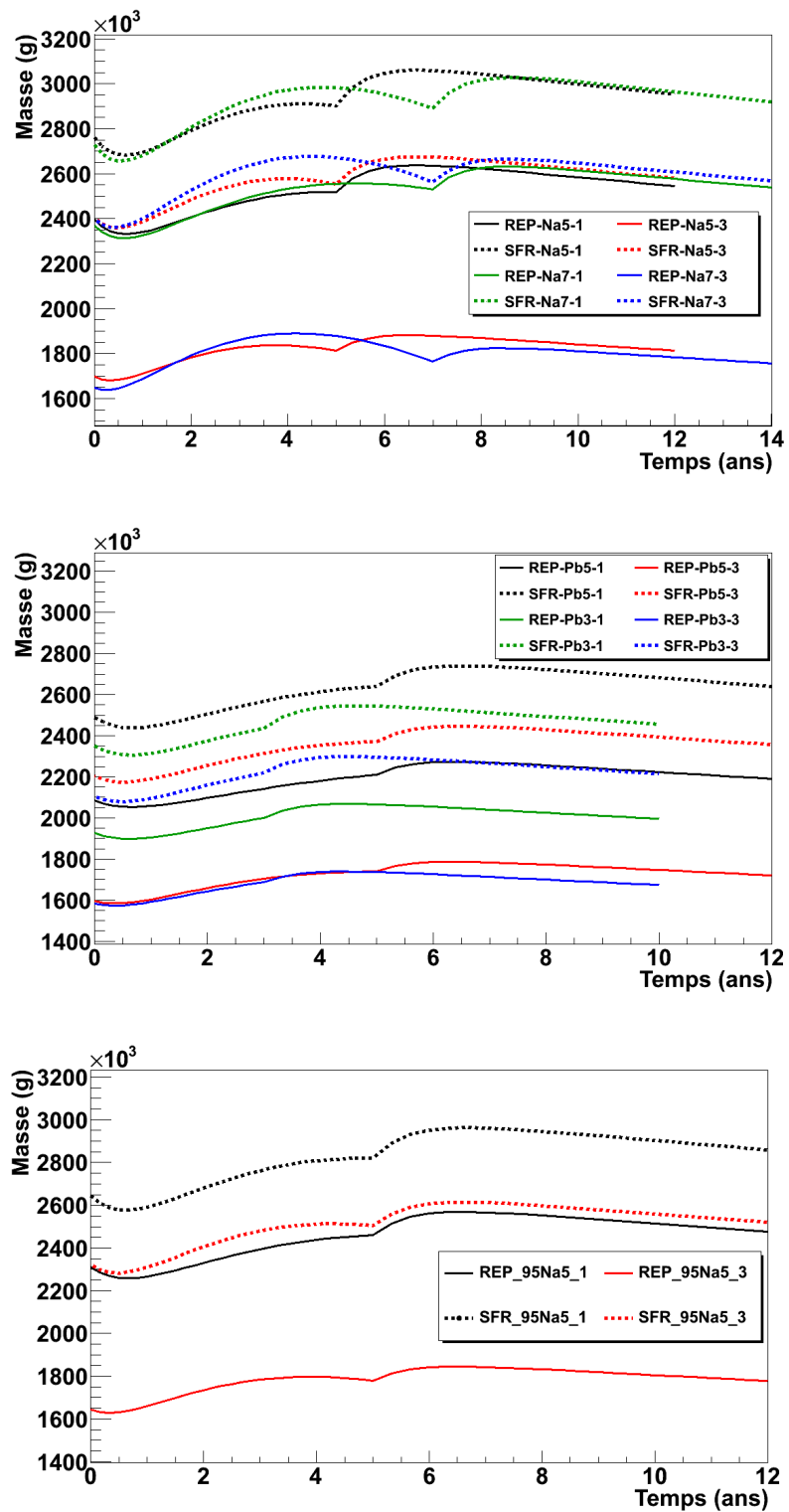
Les figures 5.1 à 5.4 représentent les évolutions des masses des isotopes les plus abondants de l'uranium et du plutonium. Nous constatons que leurs quantités en début et en fin de cycle sont généralement assez proches. Elles semblent donc à l'équilibre, ce que nous allons vérifier plus précisément.

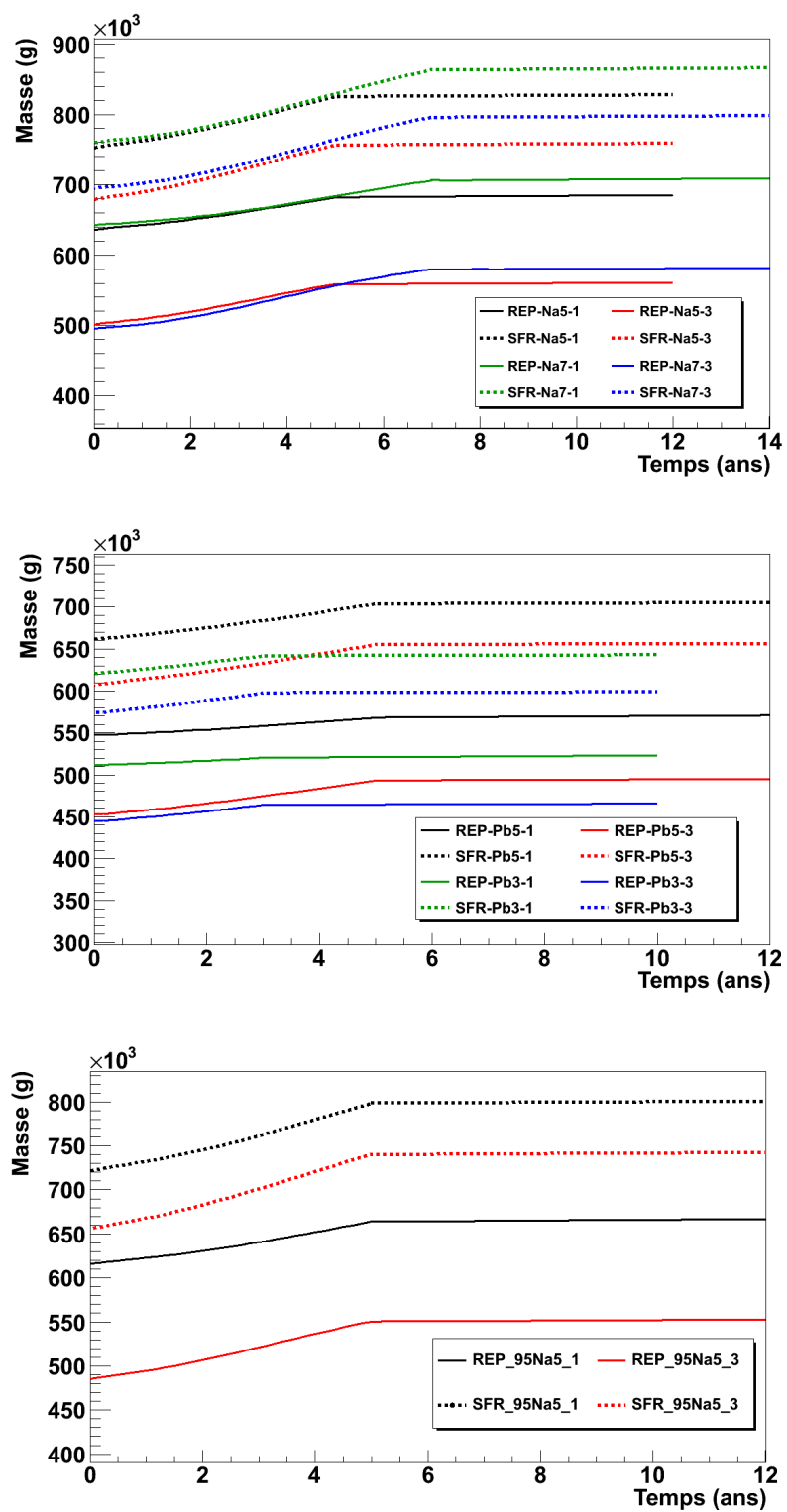
Sur les courbes du plutonium (figures 5.2 à 5.4), nous pouvons remarquer quelques grandes tendances selon les spécificités des filières. Les évolutions des masses isotopiques des filières transmutant tous les actinides mineurs issus de REP sont toujours très proches. De même, celles transmutant seulement l'américium issu de ce type de réacteur sont généralement presque similaires. Pour une première strate constituée de SFR, les mêmes tendances semblent exister.

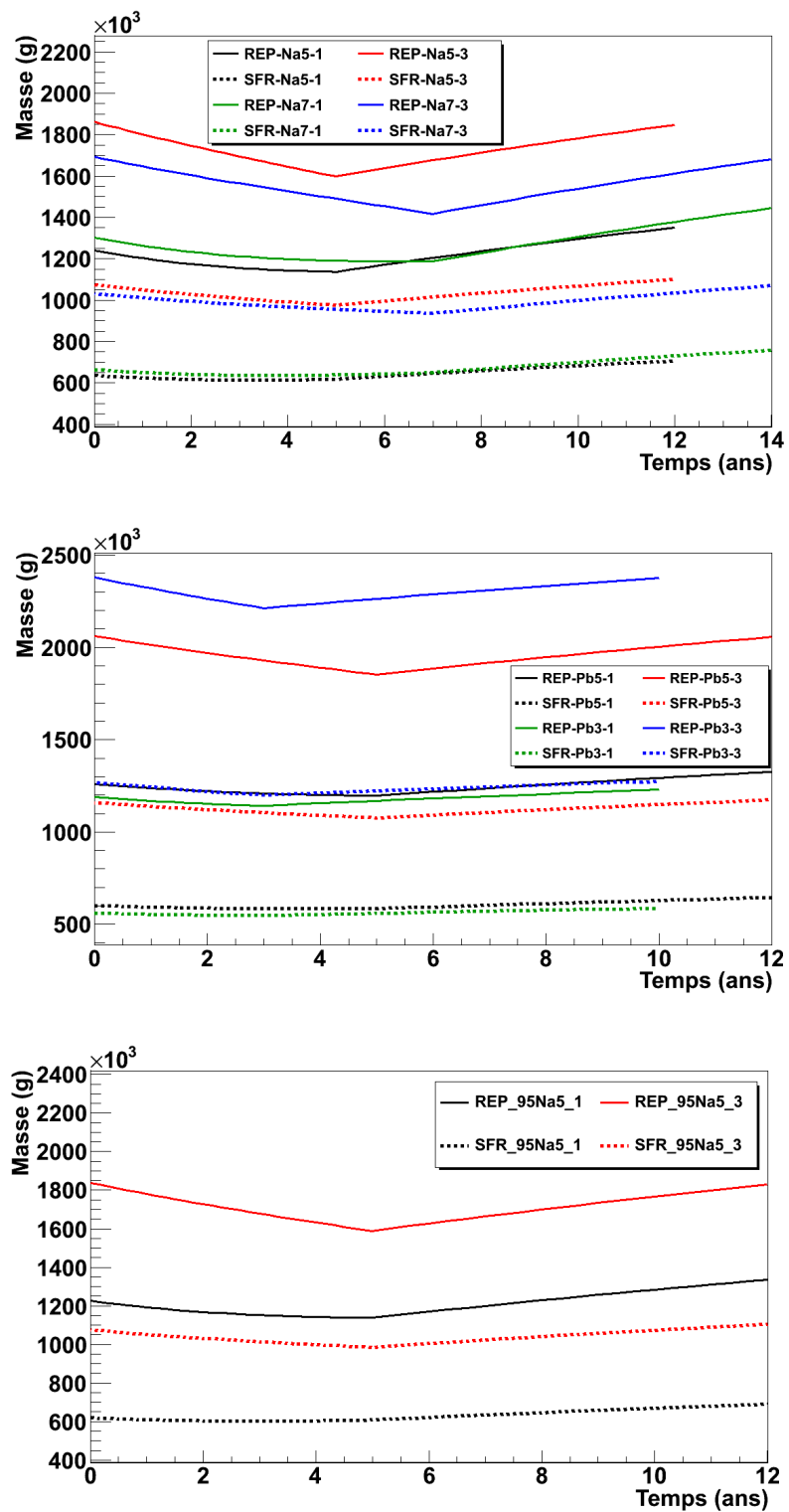
Ces observations montrent que les différences de temps d'irradiation ont une influence très inférieure au type de réacteur dont sont issus les actinides mineurs et à la stratégie de transmutation.

Afin de quantifier les écarts de masse entre le début et la fin du cycle, les tableaux 5.1 à 5.10

Figure 5.1: Évolution de l' ^{234}U au cours du cycle d'un ADS MUST.

Figure 5.2: Évolution du ^{238}Pu au cours du cycle d'un ADS MUST.

Figure 5.3: Évolution du ^{239}Pu au cours du cycle d'un ADS MUST.

Figure 5.4: Évolution du ^{240}Pu au cours du cycle d'un ADS MUST.

récapitulent les répartitions massiques des isotopes représentant plus de 1 % de la masse totale de noyaux lourds à l'un de ces deux instants. L'erreur sur la valeur des masses finales liée à la propagation de l'erreur statistique est de l'ordre de 0.1 % (voir annexe B). L'équilibre parfait de la quantité d'un isotope correspond donc à une variation de cet ordre de grandeur.

En comparant les masses au début et à la fin du cycle, on observe des variations assez inégales suivant les isotopes. Par exemple, l' ^{234}U et l' ^{236}U ont des écarts de masse inférieurs à 5 %. Ceux de l' ^{235}U et du ^{238}Pu sont respectivement de l'ordre de 2 à 10 % et de 3 à 8 %. Pour les autres isotopes de plutonium, les variations sont fortement dépendantes des filières avec des valeurs comprises entre 2 % et 18 % pour le ^{239}Pu , et de 0 % à 14 % pour le ^{240}Pu . Mais la majorité de ces écarts est inférieure à 5 %, comme les résultats de 12 des 20 filières le montrent pour le ^{240}Pu .

Nous pouvons analyser plus en détails les écarts importants obtenus pour le ^{239}Pu et le ^{240}Pu . Tout d'abord, il ne semble pas y avoir de corrélation entre ces écarts et le type de réacteur de la première strate. En effet, pour les filières différenciées par ce seul paramètre, les variations observées sont généralement du même ordre de grandeur. Par exemple, pour les filières REP-Na5-1 et SFR-Na5-1, nous obtenons respectivement des écarts de 8 % et 10 % pour le ^{239}Pu , et 9 % et 11 % pour le ^{240}Pu .

La stratégie de transmutation, ou plus exactement l'approximation faite, lors des simulations présentées dans cette partie, sur la séparation chimique des déchets et des noyaux recyclés, joue un rôle pour le ^{240}Pu . En effet, les filières où l'ensemble des actinides mineurs est transmuté ont des écarts de masses très faibles pour le ^{240}Pu à l'inverse des filières prenant en charge uniquement l'américium.

Or, le ^{244}Cm décroît vers cet isotope du plutonium avec une période de 18.1 ans et lorsqu'on ne cherche pas à le transmuter, il est envoyé aux déchets à la fin des 5 ans de refroidissement. Les décroissances ayant lieu lors des 2 ans de fabrication et produisant du ^{240}Pu ne devraient donc pas être comptabilisées.

Durant cette période, environ 9 % de la masse de cet isotope de curium se transforme en ^{240}Pu . L'impact de ce phénomène dépend des différences de masse entre ces isotopes et donc des filières, mais il explique en grande partie les écarts observés lorsque seul l'américium est transmuté.

Par exemple, pour la filière REP-Na5-1, plus de 53 kg de ^{240}Pu sont produits par décroissance radioactive du ^{244}Cm au cours des 2 ans de fabrication. Si nous soustrayons cette masse aux 1350 kg obtenus pour le ^{240}Pu en fin de cycle. L'écart avec la quantité en début de cycle est alors inférieur à 5 %.

En observant les courbes des évolutions massiques du ^{239}Pu de la figure 5.3, nous constatons

une augmentation durant l'irradiation pour l'ensemble des filières, puis un plateau. L'écart, entre les masses de début et de fin de cycle, est donc lié à la première période.

La balance entre la disparition par capture ou fission et la production du ^{239}Pu est donc positive. En effet, si sa principale source de création était les décroissances radioactives, sa masse devrait continuer à croître durant le refroidissement. C'est donc la capture neutronique de ^{238}Pu qui semble être la cause de cette augmentation.

Pour vérifier cette hypothèse, nous pouvons comparer le taux de capture du ^{238}Pu avec la somme des taux de fission et de capture du ^{239}Pu . L'histogramme 5.5 illustre les valeurs obtenues pour quelques exemples. Nous observons pour chacune des filières des taux de capture du ^{238}Pu plus grand que le taux de disparition par réaction du ^{239}Pu . La production de ^{239}Pu par le ^{238}Pu est donc supérieure à ses pertes par fission ou capture.

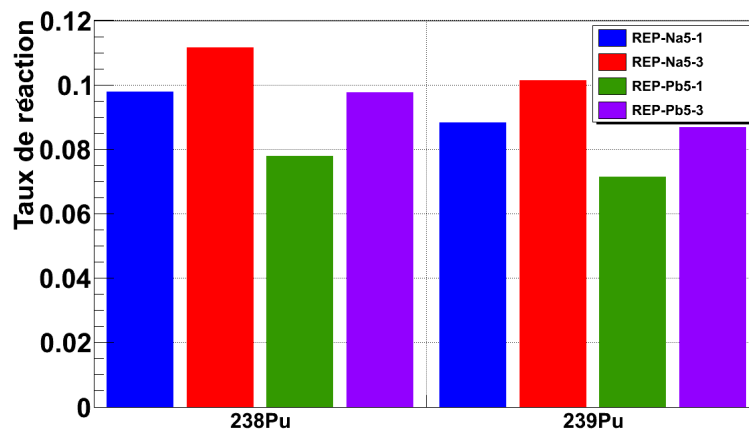


Figure 5.5: Taux de capture du ^{238}Pu et somme des taux de capture et fission du ^{239}Pu pour différentes filières.

L'étude des variations aux extrémités du cycle des quantités d'uranium et de ^{238}Pu montre qu'ils sont assez proches de l'équilibre dans l'ensemble des filières étudiées. Dans certains cas, les isotopes 239 et 240 du plutonium ont des pourcentages de variations plus importants. Cependant pour l'ensemble des filières, le surplus de ^{238}Pu est de l'ordre de 100 à 200 kg pour des masses initiales de noyaux lourds comprises entre 12 et 16 tonnes. Nous pouvons donc tout de même considérer le plutonium et l'uranium proches de l'équilibre. La méthode présentée dans le chapitre 4 permet donc d'obtenir un combustible à l'équilibre pour ces éléments.

Pour améliorer les résultats étudiés dans cette partie, la simulation d'évolution pourrait, cette fois-ci, être effectuée en extrayant le neptunium et le curium à la fin des 5 ans de refroidissement dans les filières concernées.

Dans le cas où une plus grande précision est recherchée, il est possible d'ajuster une nouvelle fois le combustible à l'aide des sections efficaces et du flux neutronique obtenus lors de la simulation réalisée avec le programme MURE. Un nouveau calcul de combustible à l'équilibre

peut être réalisé en les utilisant, avec le code ACDC. Une nouvelle simulation d'évolution pourra alors être effectuée avec le nouveau combustible obtenu.

Isotopes	REP-Na5-1			REP-Na5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)
^{234}U	$1.25 \cdot 10^6$	$1.24 \cdot 10^6$	-0.68	$6.79 \cdot 10^5$	$6.65 \cdot 10^5$	-2.06
^{235}U	$1.95 \cdot 10^5$	$2.06 \cdot 10^5$	5.45	$1.12 \cdot 10^5$	$1.21 \cdot 10^5$	7.89
^{236}U	$1.73 \cdot 10^5$	$1.76 \cdot 10^5$	1.75	$1.13 \cdot 10^5$	$1.16 \cdot 10^5$	2.36
^{238}Pu	$2.40 \cdot 10^6$	$2.55 \cdot 10^6$	6.28	$1.70 \cdot 10^6$	$1.81 \cdot 10^6$	6.77
^{239}Pu	$6.36 \cdot 10^5$	$6.85 \cdot 10^5$	7.70	$5.01 \cdot 10^5$	$5.61 \cdot 10^5$	11.83
^{240}Pu	$1.24 \cdot 10^6$	$1.35 \cdot 10^6$	8.84	$1.86 \cdot 10^6$	$1.85 \cdot 10^6$	-0.81
^{241}Pu	—	—	—	$1.31 \cdot 10^5$	$1.56 \cdot 10^5$	19.00

Tableau 5.1: Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

Isotopes	REP-Na7-1			REP-Na7-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)
^{234}U	$1.01 \cdot 10^6$	$1.01 \cdot 10^6$	0.63	$5.45 \cdot 10^5$	$5.29 \cdot 10^5$	-2.81
^{235}U	$1.55 \cdot 10^5$	$1.66 \cdot 10^5$	7.24	$8.67 \cdot 10^4$	$9.59 \cdot 10^4$	10.64
^{236}U	$1.37 \cdot 10^5$	$1.41 \cdot 10^5$	2.72	$8.59 \cdot 10^4$	$8.98 \cdot 10^4$	4.51
^{238}Pu	$2.37 \cdot 10^6$	$2.54 \cdot 10^6$	7.11	$1.65 \cdot 10^6$	$1.76 \cdot 10^6$	6.48
^{239}Pu	$6.43 \cdot 10^5$	$7.09 \cdot 10^5$	10.27	$4.95 \cdot 10^5$	$5.82 \cdot 10^5$	17.41
^{240}Pu	$1.30 \cdot 10^6$	$1.44 \cdot 10^6$	10.81	$1.69 \cdot 10^6$	$1.68 \cdot 10^6$	-0.72
^{241}Pu	—	—	—	$1.23 \cdot 10^5$	$1.52 \cdot 10^5$	23.10
^{242}Pu	—	—	—	$7.88 \cdot 10^4$	$9.08 \cdot 10^4$	15.20

Tableau 5.2: Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (7 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

Isotopes	SFR-Na5-1			SFP-Na5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)
^{234}U	$1.22 \cdot 10^6$	$1.21 \cdot 10^6$	-0.84	$9.86 \cdot 10^5$	$1.01 \cdot 10^6$	2.64
^{235}U	$1.94 \cdot 10^5$	$2.07 \cdot 10^5$	6.69	$1.59 \cdot 10^5$	$1.71 \cdot 10^5$	7.76
^{236}U	$1.69 \cdot 10^5$	$1.73 \cdot 10^5$	2.65	$1.45 \cdot 10^5$	$1.50 \cdot 10^5$	3.13
^{238}Pu	$2.76 \cdot 10^6$	$2.95 \cdot 10^6$	6.90	$2.41 \cdot 10^6$	$2.54 \cdot 10^6$	5.61
^{239}Pu	$7.52 \cdot 10^5$	$8.28 \cdot 10^5$	10.04	$6.79 \cdot 10^5$	$7.60 \cdot 10^5$	11.90
^{240}Pu	$6.37 \cdot 10^5$	$7.07 \cdot 10^5$	10.98	$1.08 \cdot 10^6$	$1.13 \cdot 10^6$	5.36

Tableau 5.3: Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

Isotopes	SFR-Na7-1			SFP-Na7-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)
^{234}U	$1.02 \cdot 10^6$	$1.01 \cdot 10^6$	-1.19	$8.44 \cdot 10^5$	$8.33 \cdot 10^5$	-1.30
^{235}U	$1.59 \cdot 10^5$	$1.73 \cdot 10^5$	8.46	$1.34 \cdot 10^5$	$1.46 \cdot 10^5$	9.20
^{236}U	$1.38 \cdot 10^5$	$1.44 \cdot 10^5$	4.19	$1.21 \cdot 10^5$	$1.26 \cdot 10^5$	4.32
^{238}Pu	$2.73 \cdot 10^6$	$2.92 \cdot 10^6$	7.02	$2.40 \cdot 10^6$	$2.57 \cdot 10^6$	7.04
^{239}Pu	$7.61 \cdot 10^5$	$8.66 \cdot 10^5$	13.88	$6.95 \cdot 10^5$	$7.98 \cdot 10^5$	14.85
^{240}Pu	$6.64 \cdot 10^5$	$7.59 \cdot 10^5$	14.16	$1.03 \cdot 10^6$	$1.07 \cdot 10^6$	3.86

Tableau 5.4: Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (7 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

Isotopes	REP-Pb3-1			REP-Pb3-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)
^{234}U	$2.56 \cdot 10^6$	$2.55 \cdot 10^6$	-0.14	$1.38 \cdot 10^6$	$1.37 \cdot 10^6$	-0.54
^{235}U	$3.95 \cdot 10^5$	$4.03 \cdot 10^5$	2.03	$2.26 \cdot 10^5$	$2.35 \cdot 10^5$	3.75
^{236}U	$3.23 \cdot 10^5$	$3.26 \cdot 10^5$	0.90	$2.46 \cdot 10^5$	$2.47 \cdot 10^5$	0.49
^{238}Pu	$1.93 \cdot 10^6$	$1.99 \cdot 10^6$	3.57	$1.58 \cdot 10^6$	$1.67 \cdot 10^6$	5.76
^{239}Pu	$5.11 \cdot 10^5$	$5.23 \cdot 10^5$	2.26	$4.44 \cdot 10^5$	$4.66 \cdot 10^5$	4.87
^{240}Pu	$1.19 \cdot 10^6$	$1.23 \cdot 10^6$	3.33	$2.38 \cdot 10^6$	$2.37 \cdot 10^6$	-0.15
^{241}Pu	—	—	—	$1.13 \cdot 10^5$	$1.29 \cdot 10^5$	14.89

Tableau 5.5: Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (3 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

Isotopes	REP-Pb5-1			REP-Pb5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)
^{234}U	$1.95 \cdot 10^6$	$1.94 \cdot 10^6$	-0.16	$9.24 \cdot 10^5$	$9.15 \cdot 10^5$	-0.93
^{235}U	$3.00 \cdot 10^5$	$3.10 \cdot 10^5$	3.32	$1.49 \cdot 10^5$	$1.59 \cdot 10^5$	6.56
^{236}U	$2.68 \cdot 10^5$	$2.70 \cdot 10^5$	0.93	$1.58 \cdot 10^5$	$1.60 \cdot 10^5$	1.27
^{238}Pu	$2.09 \cdot 10^6$	$2.19 \cdot 10^6$	4.98	$1.60 \cdot 10^6$	$1.72 \cdot 10^6$	7.73
^{239}Pu	$5.47 \cdot 10^5$	$5.71 \cdot 10^5$	4.32	$4.52 \cdot 10^5$	$4.95 \cdot 10^5$	9.52
^{240}Pu	$1.26 \cdot 10^6$	$1.33 \cdot 10^6$	5.21	$2.06 \cdot 10^6$	$2.06 \cdot 10^6$	-0.21
^{241}Pu	—	—	—	$1.21 \cdot 10^5$	$1.43 \cdot 10^5$	18.36

Tableau 5.6: Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

Isotopes	SFR-Pb3-1			SFR-Pb3-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)
^{234}U	$2.34 \cdot 10^6$	$2.33 \cdot 10^6$	-0.26	$1.93 \cdot 10^6$	$1.92 \cdot 10^6$	-0.43
^{235}U	$3.74 \cdot 10^5$	$3.84 \cdot 10^5$	2.78	$3.14 \cdot 10^5$	$3.25 \cdot 10^5$	3.32
^{236}U	$3.25 \cdot 10^5$	$3.27 \cdot 10^5$	0.79	$2.99 \cdot 10^5$	$3.01 \cdot 10^5$	0.72
^{238}Pu	$2.35 \cdot 10^6$	$2.46 \cdot 10^6$	4.47	$2.10 \cdot 10^6$	$2.22 \cdot 10^6$	5.34
^{239}Pu	$6.20 \cdot 10^5$	$6.43 \cdot 10^5$	3.65	$5.73 \cdot 10^5$	$5.99 \cdot 10^5$	4.48
^{240}Pu	$5.62 \cdot 10^5$	$5.87 \cdot 10^5$	4.49	$1.27 \cdot 10^6$	$1.28 \cdot 10^6$	0.54

Tableau 5.7: Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (3 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

Isotopes	SFR-Pb5-1			SFR-Pb5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)
^{234}U	$1.72 \cdot 10^6$	$1.72 \cdot 10^6$	-0.28	$1.37 \cdot 10^6$	$1.36 \cdot 10^6$	-0.60
^{235}U	$2.72 \cdot 10^5$	$2.85 \cdot 10^5$	4.71	$2.19 \cdot 10^5$	$2.32 \cdot 10^5$	5.56
^{236}U	$2.43 \cdot 10^5$	$2.46 \cdot 10^5$	1.29	$2.09 \cdot 10^5$	$2.12 \cdot 10^5$	1.39
^{238}Pu	$2.49 \cdot 10^6$	$2.64 \cdot 10^6$	6.08	$2.20 \cdot 10^6$	$2.36 \cdot 10^6$	6.91
^{239}Pu	$6.61 \cdot 10^5$	$7.05 \cdot 10^5$	6.66	$6.08 \cdot 10^5$	$6.57 \cdot 10^5$	8.07
^{240}Pu	$6.02 \cdot 10^5$	$6.45 \cdot 10^5$	7.16	$1.16 \cdot 10^6$	$1.17 \cdot 10^6$	1.32

Tableau 5.8: Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST à caloporteur Pb transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

Isotopes	REP-95Na5-1			REP-95Na5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)
^{234}U	$1.36 \cdot 10^6$	$1.35 \cdot 10^6$	-0.59	$6.88 \cdot 10^5$	$6.73 \cdot 10^5$	-2.25
^{235}U	$2.14 \cdot 10^5$	$2.27 \cdot 10^5$	5.90	$1.14 \cdot 10^5$	$1.25 \cdot 10^5$	9.26
^{236}U	$1.89 \cdot 10^5$	$1.93 \cdot 10^5$	1.83	$1.16 \cdot 10^5$	$1.19 \cdot 10^5$	2.75
^{238}Pu	$2.31 \cdot 10^6$	$2.48 \cdot 10^6$	7.19	$1.64 \cdot 10^6$	$1.78 \cdot 10^6$	8.13
^{239}Pu	$6.16 \cdot 10^5$	$6.67 \cdot 10^5$	8.25	$4.85 \cdot 10^5$	$5.53 \cdot 10^5$	13.95
^{240}Pu	$1.23 \cdot 10^6$	$1.34 \cdot 10^6$	8.92	$1.84 \cdot 10^6$	$1.83 \cdot 10^6$	-0.54
^{241}Pu	—	—	—	$1.28 \cdot 10^5$	$1.56 \cdot 10^5$	22.57

Tableau 5.9: Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST sans assemblage de contrôle et à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate REP. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

Isotopes	SFR-95Na5-1			SFP-95Na5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (%)
^{234}U	$1.32 \cdot 10^6$	$1.31 \cdot 10^6$	-0.98	$1.05 \cdot 10^6$	$1.03 \cdot 10^6$	-1.61
^{235}U	$2.12 \cdot 10^5$	$2.28 \cdot 10^5$	7.30	$1.70 \cdot 10^5$	$1.85 \cdot 10^5$	8.66
^{236}U	$1.85 \cdot 10^5$	$1.90 \cdot 10^5$	2.77	$1.56 \cdot 10^5$	$1.61 \cdot 10^5$	3.18
^{238}Pu	$2.65 \cdot 10^6$	$2.86 \cdot 10^6$	8.05	$2.32 \cdot 10^6$	$2.52 \cdot 10^6$	8.57
^{239}Pu	$7.21 \cdot 10^5$	$8.01 \cdot 10^5$	11.01	$6.55 \cdot 10^5$	$7.42 \cdot 10^5$	13.24
^{240}Pu	$6.20 \cdot 10^5$	$6.90 \cdot 10^5$	11.43	$1.08 \cdot 10^6$	$1.10 \cdot 10^6$	2.69

Tableau 5.10: Masses en début et fin de cycle d'uranium et de plutonium dans le combustible des ADS MUST sans assemblage de contrôle et à caloporteur Na transmutant les actinides mineurs issus d'une strate SFR. Les masses initiales (m_i) et finales (m_f) correspondent aux masses de début et de fin de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement). La colonne variation est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en début ou fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

5.1.3 Actinides mineurs

L'évolution de l'inventaire en actinides mineurs, calculée avec le programme MURE, permet de déterminer le potentiel d'incinération de chacune des filières étudiées. Cela constitue l'objectif principal de caractérisation des ADS MUST.

Analyse qualitative

Dans un premier temps, à l'aide des courbes 5.6 à 5.11, nous allons faire quelques remarques sur l'évolution des actinides mineurs durant le cycle. Ces figures correspondent aux évolutions massiques des principaux actinides mineurs durant le cycle pour l'ensemble des filières.

Tout d'abord, nous observons une allure commune pour les courbes de l'américium des différentes filières (figures 5.6 et 5.7). Durant l'irradiation, les valeurs diminuent fortement, puis sont constantes jusqu'à la fin du cycle.

L'ensemble des filières cherche à transmuter cet élément, et les périodes de décroissance de l' ^{241}Am et de l' ^{243}Am sont de 432.2 et 7380 ans. Il est donc logique d'obtenir de tels résultats pour l'ensemble des filières.

L'évolution des masses de ^{237}Np dépendent, par contre, de la filière (figure 5.8). Pour celles où tous les actinides mineurs sont transmutés, nous obtenons des courbes avec une forte décroissance pendant la période d'irradiation et ensuite une phase durant laquelle la masse de neptunium augmente très légèrement.

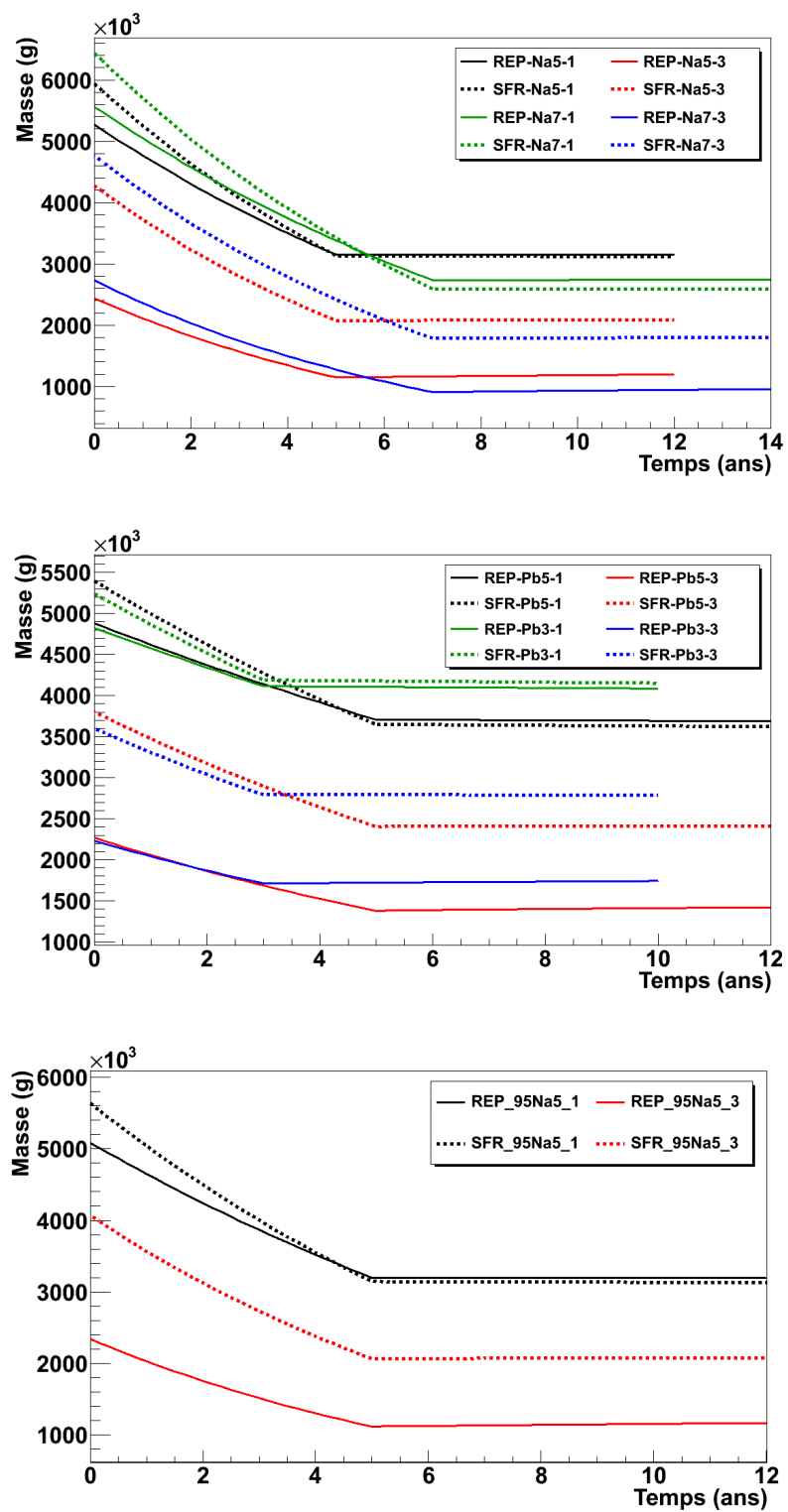
Pour les autres filières, la masse de début de cycle est négligeable et augmente jusqu'à la fin du cycle. La production est principalement liée à la décroissance de l' ^{241}Am présent en très grande quantité dans le combustible. Avec sa période de 432.2 ans, environ 2 % de sa masse devient du ^{237}Np au cours du cycle, soit l'ordre de grandeur des masses finales observées.

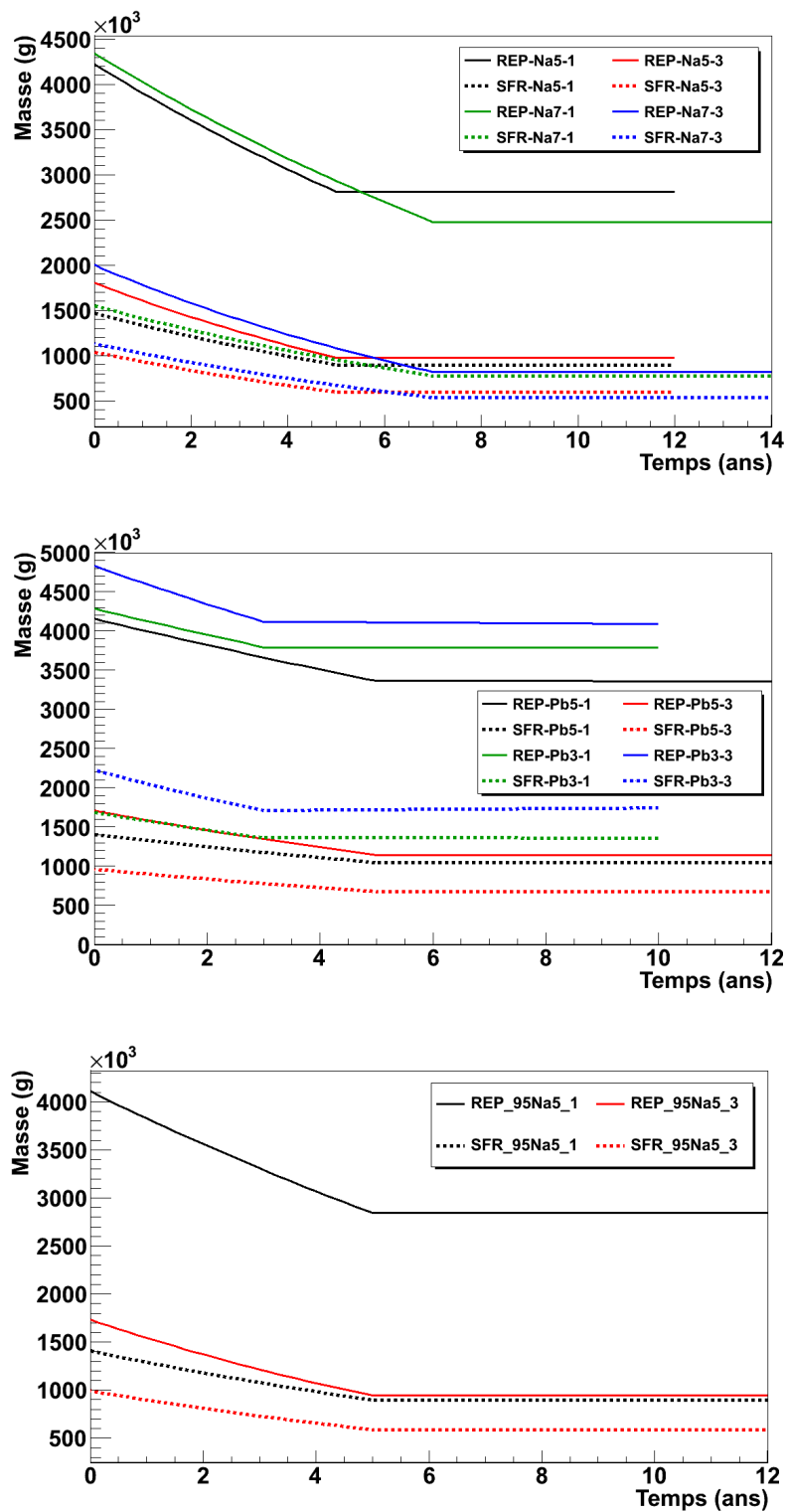
Par exemple, pour la filière REP-Na5-1, environ 100 kg sont produits par décroissance radioactive de l' ^{241}Am et nous observons une variation de masse de l'ordre de 70 kg entre le début et la fin du cycle pour le ^{237}Np . L'écart entre ces deux masses est lié aux interactions du ^{237}Np avec les neutrons au cours de l'irradiation.

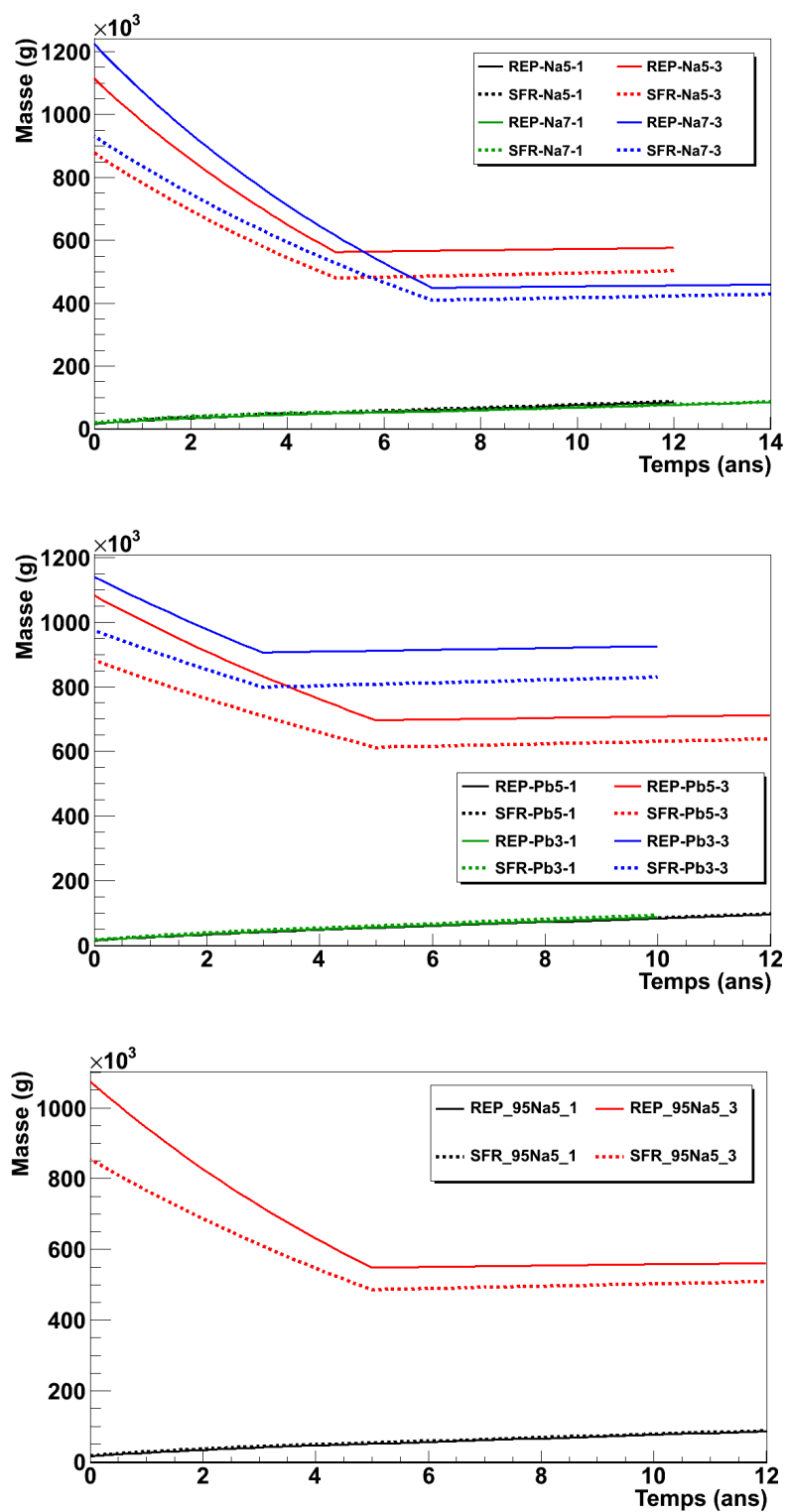
Les évolutions des deux isotopes de curium représentées par les figures 5.9, 5.10 et 5.11 sont différentes.

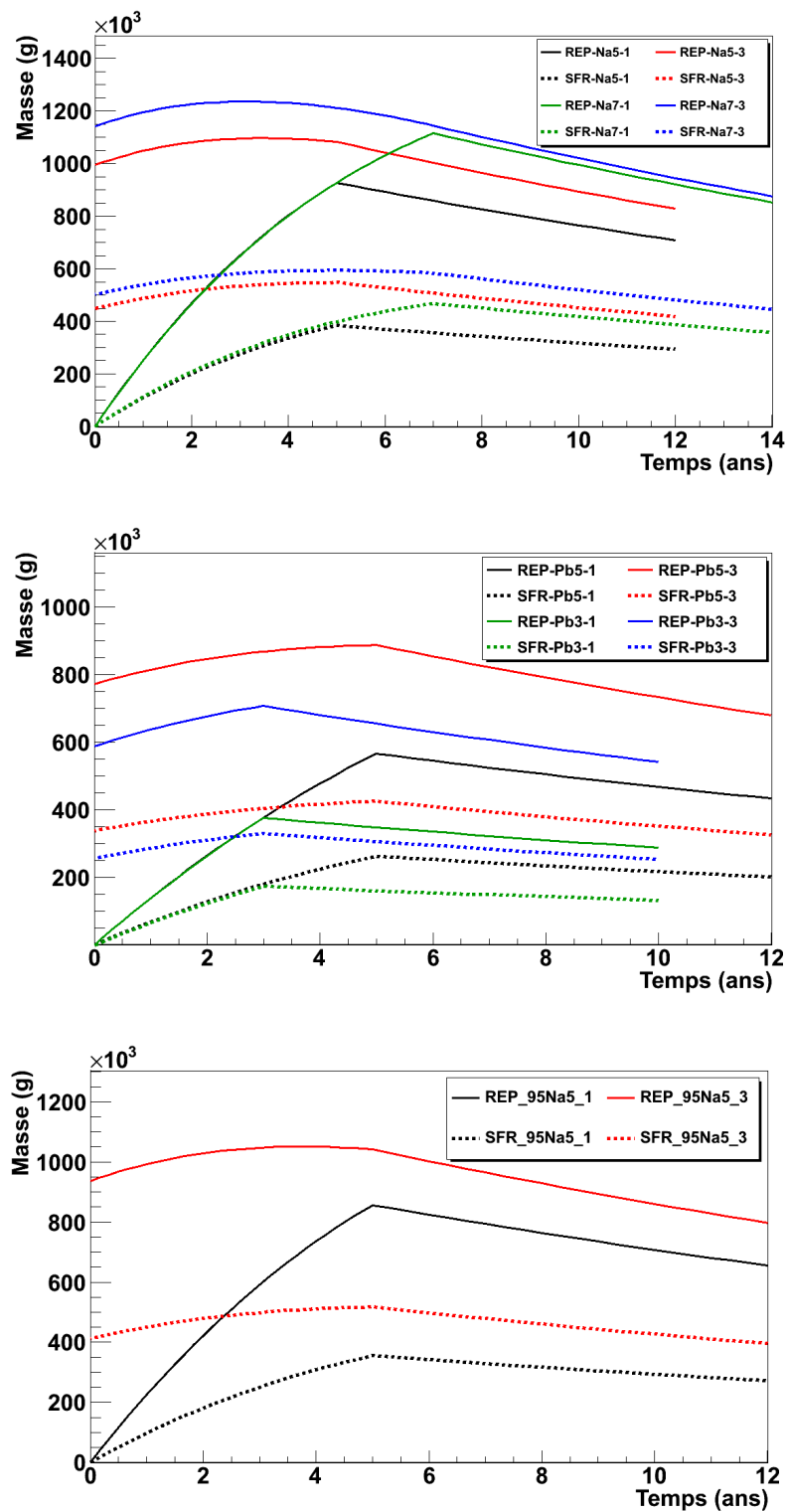
La masse de ^{244}Cm commence par augmenter, puis suivant la filière, soit elle diminue au cours de l'irradiation, soit seulement à la fin. L'augmentation est corrélée à la capture neutronique de l' ^{243}Am qui crée de l' ^{244}Am dont la décroissance avec une période de 10 heures produit le ^{244}Cm . Puis, la diminution de la quantité de cet isotope de curium, après l'irradiation, est due à sa courte demi-vie de 18.1 ans.

Pour les filières transmutant l'ensemble des actinides mineurs, la masse finale de ^{244}Cm est,

Figure 5.6: Évolution de l' ^{241}Am au cours du cycle d'un ADS MUST.

Figure 5.7: Évolution de l' ^{243}Am au cours du cycle d'un ADS MUST.

Figure 5.8: Évolution du ^{237}Np au cours du cycle d'un ADS MUST.

Figure 5.9: Évolution du ^{244}Cm au cours du cycle d'un ADS MUST.

soit légèrement inférieure, soit du même ordre que celle de départ. Le ^{244}Cm n'est donc pas ou peu transmuté au cours du cycle, mais sa masse peut être stabilisée.

Pour les autres filières, la production est variable, allant de 100 kg à plus de 800 kg.

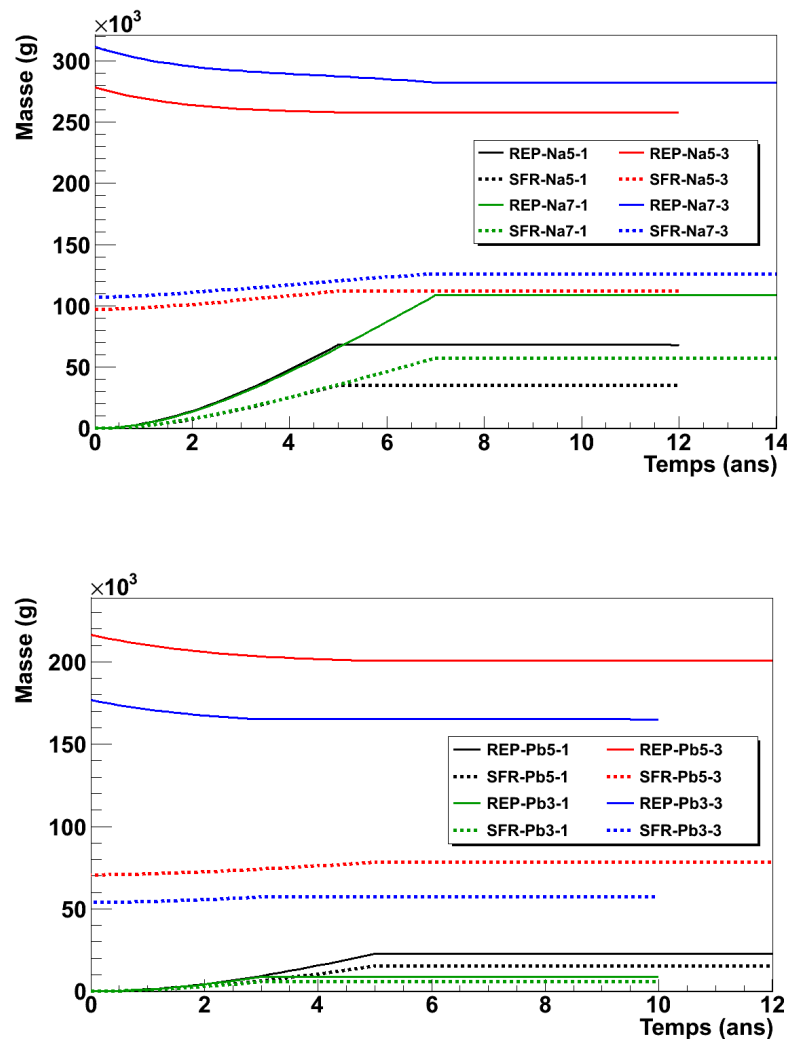


Figure 5.10: Évolution du ^{245}Cm au cours du cycle d'un ADS MUST avec assemblages de contrôle.

Le ^{245}Cm est présent en faible quantité au cours du cycle. Il est produit principalement par la capture neutronique du ^{244}Cm . Pour les filières qui cherchent à transmuter tous les actinides mineurs, nous observons deux évolutions possibles suivant s'ils sont produits dans des REP ou des SFR. Dans le premier cas, il y a une légère diminution de la masse de ^{245}Cm au cours de l'irradiation et dans le second, nous observons une petite augmentation de l'ordre de 10 kilogrammes.

Les autres filières produisent entre 10 et 100 kg de cet isotope durant l'irradiation. Sa quantité n'évolue pas durant le refroidissement quelle que soit la filière. La conclusion sur la trans-

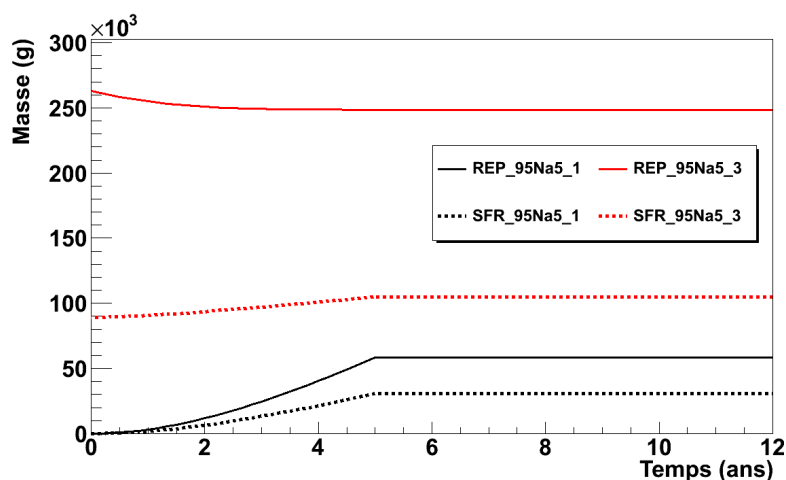


Figure 5.11: Évolution du ^{245}Cm au cours du cycle d'un ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle.

mutation du ^{245}Cm est assez semblable à celle du ^{244}Cm , avec seulement une stabilisation de sa masse au cours du cycle.

Analyse par élément

Les tableaux 5.11 à 5.15 détaillent les masses des différents isotopes en début et fin de cycle. Nous allons ainsi estimer les variations de masse pour chacun des éléments. Ces quantités dépendent principalement des stratégies de transmutation, de la durée d'irradiation et du caloporteur de l'ADS. Ce dernier paramètre est notamment corrélé aux différences de puissance entre les réacteurs refroidis au plomb et au sodium.

Tout d'abord, nous allons étudier la masse d'américium transmutée dans les filières incinérant l'ensemble des actinides mineurs.

Pour les filières REP-Pb3-3 et SFR-Pb3-3, elle est de plus de 810 et 960 kg. Pour une irradiation de 5 ans, dans un ADS à caloporteur plomb, les masses sont respectivement de l'ordre de 1.4 et 1.7 tonnes pour les filières REP-Pb5-3 et SFR-Pb5-3.

Dans les réacteurs sous-critiques refroidis au sodium, entre 2 à 2.6 tonnes sont transmutées dans les filières REP-Na5-3, SFR-Na5-3, REP-95Na5-3 et SFR-95Na5-3. Les réacteurs, dont l'irradiation est de 7 ans, transmutent près de 3 tonnes si les actinides mineurs sont produits en REP et 3.5 tonnes si la première strate est composée de SFR.

Pour les filières prenant en charge uniquement l'américium, les masses incinérées sont supérieures. Les filières REP-Pb3-3 et SFR-Pb3-3 transmutent environ 1.3 tonnes pour des temps d'irradiation de 3 et 5 ans. Dans les réacteurs à caloporteur sodium, la masse transmutée est de 3 à 3.5 tonnes en 5 ans pour les filières REP-Na5-3, SFR-Na5-3, REP-95Na5-3 et SFR-95Na5-3,

Isotopes	REP-Na5-1			REP-Na5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)
^{237}Np	$1.67 \cdot 10^4$	$8.47 \cdot 10^4$	$6.80 \cdot 10^4$	$1.11 \cdot 10^6$	$5.76 \cdot 10^5$	$-5.38 \cdot 10^5$
^{241}Am	$5.27 \cdot 10^6$	$3.15 \cdot 10^6$	$-2.12 \cdot 10^6$	$2.44 \cdot 10^6$	$1.20 \cdot 10^6$	$-1.24 \cdot 10^6$
^{242m}Am	$2.04 \cdot 10^5$	$1.88 \cdot 10^5$	$-1.56 \cdot 10^4$	$9.36 \cdot 10^4$	$8.26 \cdot 10^4$	$-1.10 \cdot 10^4$
^{243}Am	$4.22 \cdot 10^6$	$2.81 \cdot 10^6$	$-1.41 \cdot 10^6$	$1.81 \cdot 10^6$	$9.77 \cdot 10^5$	$-8.29 \cdot 10^5$
^{242}Cm	$5.10 \cdot 10^2$	$4.95 \cdot 10^2$	$-1.53 \cdot 10^1$	$2.45 \cdot 10^2$	$2.18 \cdot 10^2$	$-2.76 \cdot 10^1$
^{243}Cm	—	$7.44 \cdot 10^3$	$7.44 \cdot 10^3$	$8.43 \cdot 10^3$	$9.56 \cdot 10^3$	$1.12 \cdot 10^3$
^{244}Cm	—	$7.09 \cdot 10^5$	$7.09 \cdot 10^5$	$9.95 \cdot 10^5$	$8.28 \cdot 10^5$	$-1.67 \cdot 10^5$
^{245}Cm	—	$6.81 \cdot 10^4$	$6.81 \cdot 10^4$	$2.78 \cdot 10^5$	$2.57 \cdot 10^5$	$-2.07 \cdot 10^4$
^{246}Cm	—	$2.98 \cdot 10^3$	$2.98 \cdot 10^3$	$1.44 \cdot 10^5$	$1.48 \cdot 10^5$	$4.47 \cdot 10^3$
^{247}Cm	—	$8.49 \cdot 10^1$	$8.49 \cdot 10^1$	$2.18 \cdot 10^4$	$2.47 \cdot 10^4$	$2.87 \cdot 10^3$

Isotopes	REP-Na7-1			REP-Na7-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)
^{237}Np	$1.76 \cdot 10^4$	$8.50 \cdot 10^4$	$6.74 \cdot 10^4$	$1.22 \cdot 10^6$	$4.59 \cdot 10^5$	$-7.66 \cdot 10^5$
^{241}Am	$5.56 \cdot 10^6$	$2.74 \cdot 10^6$	$-2.82 \cdot 10^6$	$2.73 \cdot 10^6$	$9.59 \cdot 10^5$	$-1.77 \cdot 10^6$
^{242m}Am	$2.00 \cdot 10^5$	$1.77 \cdot 10^5$	$-2.31 \cdot 10^4$	$9.30 \cdot 10^4$	$7.35 \cdot 10^4$	$-1.95 \cdot 10^4$
^{243}Am	$4.34 \cdot 10^6$	$2.48 \cdot 10^6$	$-1.87 \cdot 10^6$	$2.00 \cdot 10^6$	$8.17 \cdot 10^5$	$-1.19 \cdot 10^6$
^{242}Cm	$5.02 \cdot 10^2$	$4.66 \cdot 10^2$	$-3.54 \cdot 10^1$	$2.43 \cdot 10^2$	$1.94 \cdot 10^2$	$-4.89 \cdot 10^1$
^{243}Cm	—	$8.66 \cdot 10^3$	$8.66 \cdot 10^3$	$9.38 \cdot 10^3$	$9.97 \cdot 10^3$	$5.86 \cdot 10^2$
^{244}Cm	—	$8.53 \cdot 10^5$	$8.53 \cdot 10^5$	$1.14 \cdot 10^6$	$8.76 \cdot 10^5$	$-2.67 \cdot 10^5$
^{245}Cm	—	$1.09 \cdot 10^5$	$1.09 \cdot 10^5$	$3.11 \cdot 10^5$	$2.82 \cdot 10^5$	$-2.93 \cdot 10^4$
^{246}Cm	—	$6.78 \cdot 10^3$	$6.78 \cdot 10^3$	$1.53 \cdot 10^5$	$1.62 \cdot 10^5$	$9.19 \cdot 10^3$
^{247}Cm	—	$2.63 \cdot 10^2$	$2.63 \cdot 10^2$	$2.30 \cdot 10^4$	$2.74 \cdot 10^4$	$4.46 \cdot 10^3$

Tableau 5.11: Masses en début (m_i) et fin (m_f) de cycle (5 ans d’irradiation et 7 ans de refroidissement) des actinides mineurs dans le combustible des ADS MUST des filières REP-Na5-1, REP-Na5-3, REP-Na7-1 et REP-Na7-3. La colonne « Variation » est la différence entre les deux masses.

Isotopes	SFR-Na5-1			SFR-Na5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)
^{237}Np	$1.88 \cdot 10^4$	$8.72 \cdot 10^4$	$6.85 \cdot 10^4$	$8.78 \cdot 10^5$	$5.10 \cdot 10^5$	$-3.68 \cdot 10^5$
^{241}Am	$5.94 \cdot 10^6$	$3.12 \cdot 10^6$	$-2.82 \cdot 10^6$	$4.27 \cdot 10^6$	$2.09 \cdot 10^6$	$-2.18 \cdot 10^6$
^{242m}Am	$1.83 \cdot 10^5$	$1.91 \cdot 10^5$	$7.78 \cdot 10^3$	$1.31 \cdot 10^5$	$1.34 \cdot 10^5$	$3.32 \cdot 10^3$
^{243}Am	$1.47 \cdot 10^6$	$8.97 \cdot 10^5$	$-5.70 \cdot 10^5$	$1.04 \cdot 10^6$	$5.96 \cdot 10^5$	$-4.43 \cdot 10^5$
^{242}Cm	$4.59 \cdot 10^2$	$5.04 \cdot 10^2$	$4.46 \cdot 10^1$	$3.73 \cdot 10^2$	$3.41 \cdot 10^2$	$-3.24 \cdot 10^1$
^{243}Cm	—	$1.26 \cdot 10^4$	$1.26 \cdot 10^4$	$8.05 \cdot 10^3$	$1.29 \cdot 10^4$	$4.82 \cdot 10^3$
^{244}Cm	—	$2.94 \cdot 10^5$	$2.94 \cdot 10^5$	$4.48 \cdot 10^5$	$3.87 \cdot 10^5$	$-6.15 \cdot 10^4$
^{245}Cm	—	$3.51 \cdot 10^4$	$3.51 \cdot 10^4$	$9.71 \cdot 10^4$	$1.12 \cdot 10^5$	$1.47 \cdot 10^4$
^{246}Cm	—	$1.96 \cdot 10^3$	$1.96 \cdot 10^3$	$4.98 \cdot 10^4$	$5.29 \cdot 10^4$	$3.09 \cdot 10^3$
^{247}Cm	—	$7.10 \cdot 10^1$	$7.10 \cdot 10^1$	$7.40 \cdot 10^3$	$8.43 \cdot 10^3$	$1.02 \cdot 10^3$

Isotopes	SFR-Na7-1			SFR-Na7-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)
^{237}Np	$2.04 \cdot 10^4$	$8.50 \cdot 10^4$	$6.47 \cdot 10^4$	$9.32 \cdot 10^5$	$4.29 \cdot 10^5$	$-5.03 \cdot 10^5$
^{241}Am	$6.43 \cdot 10^6$	$2.59 \cdot 10^6$	$-3.85 \cdot 10^6$	$4.76 \cdot 10^6$	$1.80 \cdot 10^6$	$-2.96 \cdot 10^6$
^{242m}Am	$1.75 \cdot 10^5$	$1.79 \cdot 10^5$	$3.94 \cdot 10^3$	$1.27 \cdot 10^5$	$1.29 \cdot 10^5$	$1.97 \cdot 10^3$
^{243}Am	$1.55 \cdot 10^6$	$7.73 \cdot 10^5$	$-7.78 \cdot 10^5$	$1.13 \cdot 10^6$	$5.33 \cdot 10^5$	$-5.99 \cdot 10^5$
^{242}Cm	$4.38 \cdot 10^2$	$4.71 \cdot 10^2$	$3.30 \cdot 10^1$	$3.74 \cdot 10^2$	$3.40 \cdot 10^2$	$-3.42 \cdot 10^1$
^{243}Cm	—	$1.46 \cdot 10^4$	$1.46 \cdot 10^4$	$8.26 \cdot 10^3$	$1.38 \cdot 10^4$	$5.57 \cdot 10^3$
^{244}Cm	—	$3.58 \cdot 10^5$	$3.58 \cdot 10^5$	$5.02 \cdot 10^5$	$4.46 \cdot 10^5$	$-5.56 \cdot 10^4$
^{245}Cm	—	$5.73 \cdot 10^4$	$5.73 \cdot 10^4$	$1.07 \cdot 10^5$	$1.26 \cdot 10^5$	$1.89 \cdot 10^4$
^{246}Cm	—	$4.74 \cdot 10^3$	$4.74 \cdot 10^3$	$5.52 \cdot 10^4$	$6.00 \cdot 10^4$	$4.83 \cdot 10^3$
^{247}Cm	—	$2.38 \cdot 10^2$	$2.38 \cdot 10^2$	$8.17 \cdot 10^3$	$9.60 \cdot 10^3$	$1.43 \cdot 10^3$

Tableau 5.12: Masses en début (m_i) et fin (m_f) de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement) des actinides mineurs dans le combustible des ADS MUST des filières SFR-Na5-1, SFR-Na5-3, SFR-Na7-1 et SFR-Na7-3. La colonne « Variation » est la différence entre les deux masses.

Isotopes	REP-Pb3-1			REP-Pb3-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)
^{237}Np	$1.53 \cdot 10^4$	$8.72 \cdot 10^4$	$7.19 \cdot 10^4$	$1.14 \cdot 10^6$	$9.24 \cdot 10^5$	$-2.15 \cdot 10^5$
^{241}Am	$4.82 \cdot 10^6$	$4.09 \cdot 10^6$	$-7.39 \cdot 10^5$	$2.23 \cdot 10^6$	$1.74 \cdot 10^6$	$-4.87 \cdot 10^5$
^{242m}Am	$1.84 \cdot 10^5$	$1.81 \cdot 10^5$	$-3.12 \cdot 10^3$	$9.08 \cdot 10^4$	$8.93 \cdot 10^4$	$-1.49 \cdot 10^3$
^{243}Am	$4.28 \cdot 10^6$	$3.79 \cdot 10^6$	$-4.95 \cdot 10^5$	$1.69 \cdot 10^6$	$1.36 \cdot 10^6$	$-3.25 \cdot 10^5$
^{242}Cm	$4.57 \cdot 10^2$	$4.75 \cdot 10^2$	$1.77 \cdot 10^1$	$2.36 \cdot 10^2$	$2.35 \cdot 10^2$	$-1.63 \cdot 10^0$
^{243}Cm	—	$1.29 \cdot 10^3$	$1.29 \cdot 10^3$	$4.06 \cdot 10^3$	$4.13 \cdot 10^3$	$7.47 \cdot 10^1$
^{244}Cm	—	$2.87 \cdot 10^5$	$2.87 \cdot 10^5$	$5.87 \cdot 10^5$	$5.40 \cdot 10^5$	$-4.69 \cdot 10^4$
^{245}Cm	—	$8.93 \cdot 10^3$	$8.93 \cdot 10^3$	$1.77 \cdot 10^5$	$1.65 \cdot 10^5$	$-1.17 \cdot 10^4$
^{246}Cm	—	$1.14 \cdot 10^2$	$1.14 \cdot 10^2$	$9.79 \cdot 10^4$	$9.86 \cdot 10^4$	$7.57 \cdot 10^2$
^{247}Cm	—	$1.01 \cdot 10^0$	$1.01 \cdot 10^0$	$1.39 \cdot 10^4$	$1.47 \cdot 10^4$	$8.46 \cdot 10^2$

Isotopes	REP-Pb5-1			REP-Pb5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)
^{237}Np	$1.54 \cdot 10^4$	$9.50 \cdot 10^4$	$7.95 \cdot 10^4$	$1.08 \cdot 10^6$	$7.11 \cdot 10^5$	$-3.70 \cdot 10^5$
^{241}Am	$4.88 \cdot 10^6$	$3.69 \cdot 10^6$	$-1.19 \cdot 10^6$	$2.27 \cdot 10^6$	$1.42 \cdot 10^6$	$-8.46 \cdot 10^5$
^{242m}Am	$1.88 \cdot 10^5$	$1.82 \cdot 10^5$	$-6.13 \cdot 10^3$	$8.94 \cdot 10^4$	$8.44 \cdot 10^4$	$-5.06 \cdot 10^3$
^{243}Am	$4.16 \cdot 10^6$	$3.36 \cdot 10^6$	$-7.94 \cdot 10^5$	$1.71 \cdot 10^6$	$1.14 \cdot 10^6$	$-5.66 \cdot 10^5$
^{242}Cm	$4.67 \cdot 10^2$	$4.77 \cdot 10^2$	$1.03 \cdot 10^1$	$2.32 \cdot 10^2$	$2.22 \cdot 10^2$	$-1.06 \cdot 10^1$
^{243}Cm	—	$2.26 \cdot 10^3$	$2.26 \cdot 10^3$	$5.30 \cdot 10^3$	$5.50 \cdot 10^3$	$1.99 \cdot 10^2$
^{244}Cm	—	$4.32 \cdot 10^5$	$4.32 \cdot 10^5$	$7.71 \cdot 10^5$	$6.78 \cdot 10^5$	$-9.33 \cdot 10^4$
^{245}Cm	—	$2.29 \cdot 10^4$	$2.29 \cdot 10^4$	$2.16 \cdot 10^5$	$2.01 \cdot 10^5$	$-1.58 \cdot 10^4$
^{246}Cm	—	$5.22 \cdot 10^2$	$5.22 \cdot 10^2$	$1.17 \cdot 10^5$	$1.19 \cdot 10^5$	$2.31 \cdot 10^3$
^{247}Cm	—	$7.91 \cdot 10^0$	$7.91 \cdot 10^0$	$1.68 \cdot 10^4$	$1.85 \cdot 10^4$	$1.78 \cdot 10^3$

Tableau 5.13: Masses en début (m_i) et fin (m_f) de cycle (5 ans d’irradiation et 7 ans de refroidissement) des actinides mineurs dans le combustible des ADS MUST des filières REP-Pb3-1, REP-Pb3-3, REP-Pb5-1 et REP-Pb5-3. La colonne « Variation » est la différence entre les deux masses.

Isotopes	SFR-Pb3-1			SFR-Pb3-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)
^{237}Np	$1.66 \cdot 10^4$	$9.25 \cdot 10^4$	$7.59 \cdot 10^4$	$9.74 \cdot 10^5$	$8.29 \cdot 10^5$	$-1.45 \cdot 10^5$
^{241}Am	$5.24 \cdot 10^6$	$4.15 \cdot 10^6$	$-1.09 \cdot 10^6$	$3.60 \cdot 10^6$	$2.79 \cdot 10^6$	$-8.07 \cdot 10^5$
^{242m}Am	$1.77 \cdot 10^5$	$1.84 \cdot 10^5$	$7.02 \cdot 10^3$	$1.24 \cdot 10^5$	$1.30 \cdot 10^5$	$5.54 \cdot 10^3$
^{243}Am	$1.42 \cdot 10^6$	$1.20 \cdot 10^6$	$-2.21 \cdot 10^5$	$9.38 \cdot 10^5$	$7.74 \cdot 10^5$	$-1.64 \cdot 10^5$
^{242}Cm	$4.39 \cdot 10^2$	$4.84 \cdot 10^2$	$4.43 \cdot 10^1$	$3.34 \cdot 10^2$	$3.41 \cdot 10^2$	$6.75 \cdot 10^0$
^{243}Cm	—	$2.95 \cdot 10^3$	$2.95 \cdot 10^3$	$2.98 \cdot 10^3$	$4.35 \cdot 10^3$	$1.36 \cdot 10^3$
^{244}Cm	—	$1.33 \cdot 10^5$	$1.33 \cdot 10^5$	$2.57 \cdot 10^5$	$2.53 \cdot 10^5$	$-3.54 \cdot 10^3$
^{245}Cm	—	$5.92 \cdot 10^3$	$5.92 \cdot 10^3$	$5.40 \cdot 10^4$	$5.73 \cdot 10^4$	$3.33 \cdot 10^3$
^{246}Cm	—	$1.10 \cdot 10^2$	$1.10 \cdot 10^2$	$2.82 \cdot 10^4$	$2.88 \cdot 10^4$	$5.24 \cdot 10^2$
^{247}Cm	—	$1.40 \cdot 10^0$	$1.40 \cdot 10^0$	$3.96 \cdot 10^3$	$4.19 \cdot 10^3$	$2.28 \cdot 10^2$

Isotopes	SFR-Pb5-1			SFR-Pb5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)
^{237}Np	$1.71 \cdot 10^4$	$9.72 \cdot 10^4$	$8.02 \cdot 10^4$	$8.82 \cdot 10^5$	$6.39 \cdot 10^5$	$-2.43 \cdot 10^5$
^{241}Am	$5.39 \cdot 10^6$	$3.62 \cdot 10^6$	$-1.77 \cdot 10^6$	$3.80 \cdot 10^6$	$2.41 \cdot 10^6$	$-1.39 \cdot 10^6$
^{242m}Am	$1.76 \cdot 10^5$	$1.84 \cdot 10^5$	$8.73 \cdot 10^3$	$1.25 \cdot 10^5$	$1.31 \cdot 10^5$	$6.25 \cdot 10^3$
^{243}Am	$1.40 \cdot 10^6$	$1.05 \cdot 10^6$	$-3.59 \cdot 10^5$	$9.61 \cdot 10^5$	$6.79 \cdot 10^5$	$-2.82 \cdot 10^5$
^{242}Cm	$4.36 \cdot 10^2$	$4.85 \cdot 10^2$	$4.85 \cdot 10^1$	$3.43 \cdot 10^2$	$3.44 \cdot 10^2$	$1.17 \cdot 10^0$
^{243}Cm	—	$5.03 \cdot 10^3$	$5.03 \cdot 10^3$	$4.08 \cdot 10^3$	$6.45 \cdot 10^3$	$2.37 \cdot 10^3$
^{244}Cm	—	$2.00 \cdot 10^5$	$2.00 \cdot 10^5$	$3.38 \cdot 10^5$	$3.25 \cdot 10^5$	$-1.29 \cdot 10^4$
^{245}Cm	—	$1.51 \cdot 10^4$	$1.51 \cdot 10^4$	$7.07 \cdot 10^4$	$7.82 \cdot 10^4$	$7.48 \cdot 10^3$
^{246}Cm	—	$5.07 \cdot 10^2$	$5.07 \cdot 10^2$	$3.77 \cdot 10^4$	$3.90 \cdot 10^4$	$1.31 \cdot 10^3$
^{247}Cm	—	$1.12 \cdot 10^1$	$1.12 \cdot 10^1$	$5.34 \cdot 10^3$	$5.85 \cdot 10^3$	$5.04 \cdot 10^2$

Tableau 5.14: Masses en début (m_i) et fin (m_f) de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement) des actinides mineurs dans le combustible des ADS MUST des filières SFR-Pb3-1, SFR-Pb3-3, SFR-Pb5-1 et SFR-Pb5-3. La colonne « Variation » est la différence entre les deux masses.

Isotopes	REP-95Na5-1			REP-95Na5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)
^{237}Np	$1.61 \cdot 10^4$	$8.59 \cdot 10^4$	$6.98 \cdot 10^4$	$1.07 \cdot 10^6$	$5.61 \cdot 10^5$	$-5.13 \cdot 10^5$
^{241}Am	$5.08 \cdot 10^6$	$3.19 \cdot 10^6$	$-1.89 \cdot 10^6$	$2.34 \cdot 10^6$	$1.17 \cdot 10^6$	$-1.18 \cdot 10^6$
^{242m}Am	$1.99 \cdot 10^5$	$1.88 \cdot 10^5$	$-1.15 \cdot 10^4$	$9.08 \cdot 10^4$	$8.12 \cdot 10^4$	$-9.65 \cdot 10^3$
^{243}Am	$4.11 \cdot 10^6$	$2.84 \cdot 10^6$	$-1.27 \cdot 10^6$	$1.73 \cdot 10^6$	$9.44 \cdot 10^5$	$-7.90 \cdot 10^5$
^{242}Cm	$4.98 \cdot 10^2$	$4.93 \cdot 10^2$	$-5.04 \cdot 10^0$	$2.38 \cdot 10^2$	$2.14 \cdot 10^2$	$-2.40 \cdot 10^1$
^{243}Cm	—	$6.53 \cdot 10^3$	$6.53 \cdot 10^3$	$7.81 \cdot 10^3$	$9.48 \cdot 10^3$	$1.67 \cdot 10^3$
^{244}Cm	—	$6.55 \cdot 10^5$	$6.55 \cdot 10^5$	$9.36 \cdot 10^5$	$7.97 \cdot 10^5$	$-1.39 \cdot 10^5$
^{245}Cm	—	$5.82 \cdot 10^4$	$5.82 \cdot 10^4$	$2.63 \cdot 10^5$	$2.48 \cdot 10^5$	$-1.46 \cdot 10^4$
^{246}Cm	—	$2.30 \cdot 10^3$	$2.30 \cdot 10^3$	$1.36 \cdot 10^5$	$1.42 \cdot 10^5$	$5.31 \cdot 10^3$
^{247}Cm	—	$6.07 \cdot 10^1$	$6.07 \cdot 10^1$	$2.07 \cdot 10^4$	$2.39 \cdot 10^4$	$3.21 \cdot 10^3$

Isotopes	SFR-95Na5-1			SFR-95Na5-3		
	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)	m_i (g)	m_f (g)	Variation (g)
^{237}Np	$1.78 \cdot 10^4$	$8.80 \cdot 10^4$	$7.02 \cdot 10^4$	$8.55 \cdot 10^5$	$5.09 \cdot 10^5$	$-3.46 \cdot 10^5$
^{241}Am	$5.64 \cdot 10^6$	$3.13 \cdot 10^6$	$-2.51 \cdot 10^6$	$4.06 \cdot 10^6$	$2.07 \cdot 10^6$	$-1.99 \cdot 10^6$
^{242m}Am	$1.79 \cdot 10^5$	$1.89 \cdot 10^5$	$9.67 \cdot 10^3$	$1.28 \cdot 10^5$	$1.34 \cdot 10^5$	$5.99 \cdot 10^3$
^{243}Am	$1.41 \cdot 10^6$	$8.96 \cdot 10^5$	$-5.10 \cdot 10^5$	$9.93 \cdot 10^5$	$5.88 \cdot 10^5$	$-4.05 \cdot 10^5$
^{242}Cm	$4.49 \cdot 10^2$	$4.98 \cdot 10^2$	$4.87 \cdot 10^1$	$3.62 \cdot 10^2$	$3.53 \cdot 10^2$	$-9.08 \cdot 10^0$
^{243}Cm	—	$1.13 \cdot 10^4$	$1.13 \cdot 10^4$	$6.94 \cdot 10^3$	$1.26 \cdot 10^4$	$5.68 \cdot 10^3$
^{244}Cm	—	$2.72 \cdot 10^5$	$2.72 \cdot 10^5$	$4.11 \cdot 10^5$	$3.95 \cdot 10^5$	$-1.61 \cdot 10^4$
^{245}Cm	—	$3.05 \cdot 10^4$	$3.05 \cdot 10^4$	$8.92 \cdot 10^4$	$1.05 \cdot 10^5$	$1.55 \cdot 10^4$
^{246}Cm	—	$1.56 \cdot 10^3$	$1.56 \cdot 10^3$	$4.57 \cdot 10^4$	$4.89 \cdot 10^4$	$3.12 \cdot 10^3$
^{247}Cm	—	$5.30 \cdot 10^1$	$5.30 \cdot 10^1$	$6.80 \cdot 10^3$	$7.84 \cdot 10^3$	$1.05 \cdot 10^3$

Tableau 5.15: Masses en début (m_i) et fin (m_f) de cycle (5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement) des actinides mineurs dans le combustible des ADS MUST des filières REP-95Na5-1, REP-95Na5-3, SFR-95Na5-1 et SFR-95Na5-3. La colonne « Variation » est la différence entre les deux masses.

et de plus de 4.6 tonnes en 7 ans pour les filières REP-Na7-3 et SFR-Na7-3.

La masse de neptunium diminue pour les stratégies transmutant l'ensemble des actinides mineurs et augmente dans le cas contraire. Dans le premier cas, pour les filières composées d'un réacteur à caloporteur plomb, environ 200 kg sont incinérées en 3 ans, et entre 240 et 370 kg en 5 ans. Dans les ADS refroidis au sodium, entre 350 et 540 kg sont transmutés avec un cycle d'irradiation de 5 ans, et avec une irradiation de 7 ans, 500 et 770 kg.

Pour les filières transmutant uniquement l'américium, entre 70 et 80 kg sont produits. Ces valeurs sont peu dépendantes des autres paramètres différenciant les filières.

Enfin, le curium est également produit dans les filières transmutant seulement l'américium. Dans celles composées d'ADS à caloporteur plomb, la masse créée est de 140 et 300 kg pour un cycle d'irradiation de 3 ans, et de 220 et 450 kg si l'irradiation est de 5 ans. Avec des réacteurs refroidis au sodium, les masses produites pour des durées d'irradiation de 5 et 7 ans, sont respectivement d'environ 320 et 790 kg, et de 440 et 980 kg.

Nous pouvons remarquer que les masses produites pour les filières transmutant les actinides mineurs issus de REP sont près de deux fois supérieures à celles associées à des SFR. Cette observation est liée à un combustible contenant près de trois fois plus d' ^{243}Am pour les filières dont la première strate est composée de REP, que pour une première strate composée de SFR. Or, la capture neutronique de cet isotope de l'américium produit de l' ^{244}Am qui décroît en 10.1 heures vers le ^{244}Cm , l'isotope de curium le plus abondant dans le combustible.

Dans le cas de la transmutation de l'ensemble des actinides mineurs, moins de 40 kg sont transmutés si la première strate est composée de SFR. Si les ADS sont associés à des REP, les masses incinérées sont comprises entre 60 et 280 kg. Ces quantités augmentent avec la durée d'irradiation.

Potentiel de transmutation

Nous avons observé l'évolution des masses des principaux isotopes durant le cycle, nous allons à présent faire une estimation globale des masses produites et transmutées afin d'estimer le potentiel de transmutation des ADS MUST. Pour cela, nous utiliserons les résultats des différentes filières, contenus dans le tableau 5.16.

Tout d'abord, nous allons étudier les masses d'actinides mineurs produites en fonction de la stratégie de transmutation. Nous observons des productions de l'ordre de 200 kg à plus de 1 tonne pour les filières cherchant à transmuter uniquement l'américium, en comparaison les autres filières en créent au plus une trentaine de kilogrammes. Ces écarts confirment une forte production de neptunium et de curium lorsqu'ils ne sont pas transmutés.

Nous remarquons une influence de la strate dont sont issus les actinides mineurs. En effet, pour des filières transmutant seulement l'américium et dont la seule différence est le type de

Filières	Masses d'actinides mineurs (kg)			Annuelles (kg·an ⁻¹)	Normalisées (kg·GW ⁻¹ ·an ⁻¹)
	Produites	Transmutées	Différences		
REP-Na5-1	$8.56 \cdot 10^2$	$3.55 \cdot 10^3$	$2.69 \cdot 10^3$	$5.38 \cdot 10^2$	$4.27 \cdot 10^2$
REP-Na5-3	$8.46 \cdot 10^0$	$2.81 \cdot 10^3$	$2.80 \cdot 10^3$	$5.60 \cdot 10^2$	$4.00 \cdot 10^2$
REP-Na7-1	$1.04 \cdot 10^3$	$4.71 \cdot 10^3$	$3.66 \cdot 10^3$	$5.23 \cdot 10^2$	$4.22 \cdot 10^2$
REP-Na7-3	$1.42 \cdot 10^1$	$4.04 \cdot 10^3$	$4.02 \cdot 10^3$	$5.75 \cdot 10^2$	$3.94 \cdot 10^2$
SFR-Na5-1	$4.20 \cdot 10^2$	$3.39 \cdot 10^3$	$2.97 \cdot 10^3$	$5.94 \cdot 10^2$	$4.27 \cdot 10^2$
SFR-Na5-3	$2.70 \cdot 10^1$	$3.06 \cdot 10^3$	$3.03 \cdot 10^3$	$6.06 \cdot 10^2$	$4.21 \cdot 10^2$
SFR-Na7-1	$5.04 \cdot 10^2$	$4.62 \cdot 10^3$	$4.12 \cdot 10^3$	$5.89 \cdot 10^2$	$4.18 \cdot 10^2$
SFR-Na7-3	$3.27 \cdot 10^1$	$4.12 \cdot 10^3$	$4.09 \cdot 10^3$	$5.84 \cdot 10^2$	$4.09 \cdot 10^2$
REP-Pb3-1	$3.69 \cdot 10^2$	$1.24 \cdot 10^3$	$8.68 \cdot 10^2$	$2.89 \cdot 10^2$	$4.45 \cdot 10^2$
REP-Pb3-3	$1.68 \cdot 10^0$	$1.09 \cdot 10^3$	$1.09 \cdot 10^3$	$3.62 \cdot 10^2$	$4.26 \cdot 10^2$
REP-Pb5-1	$5.38 \cdot 10^2$	$1.99 \cdot 10^3$	$1.45 \cdot 10^3$	$2.90 \cdot 10^2$	$4.40 \cdot 10^2$
REP-Pb5-3	$4.29 \cdot 10^0$	$1.90 \cdot 10^3$	$1.89 \cdot 10^3$	$3.78 \cdot 10^2$	$4.16 \cdot 10^2$
SFR-Pb3-1	$2.25 \cdot 10^2$	$1.31 \cdot 10^3$	$1.08 \cdot 10^3$	$3.61 \cdot 10^2$	$4.46 \cdot 10^2$
SFR-Pb3-3	$1.10 \cdot 10^1$	$1.12 \cdot 10^3$	$1.11 \cdot 10^3$	$3.70 \cdot 10^2$	$4.40 \cdot 10^2$
SFR-Pb5-1	$3.10 \cdot 10^2$	$2.13 \cdot 10^3$	$1.82 \cdot 10^3$	$3.64 \cdot 10^2$	$4.39 \cdot 10^2$
SFR-Pb5-3	$1.79 \cdot 10^1$	$1.93 \cdot 10^3$	$1.91 \cdot 10^3$	$3.82 \cdot 10^2$	$4.29 \cdot 10^2$
REP-95Na5-1	$7.92 \cdot 10^2$	$3.17 \cdot 10^3$	$2.38 \cdot 10^3$	$4.75 \cdot 10^2$	$4.40 \cdot 10^2$
REP-95Na5-3	$1.02 \cdot 10^1$	$2.64 \cdot 10^3$	$2.63 \cdot 10^3$	$5.26 \cdot 10^2$	$4.08 \cdot 10^2$
SFR-95Na5-1	$3.95 \cdot 10^2$	$3.02 \cdot 10^3$	$2.62 \cdot 10^3$	$5.25 \cdot 10^2$	$4.41 \cdot 10^2$
SFR-95Na5-3	$3.13 \cdot 10^1$	$2.75 \cdot 10^3$	$2.72 \cdot 10^3$	$5.44 \cdot 10^2$	$4.29 \cdot 10^2$

Tableau 5.16: Bilan des masses d'actinides mineurs produites et transmutées au cours du cycle pour l'ensemble des filières étudiées. La colonne « Différences » contient le résultat de la différence entre la masse transmutée et la masse produite. Les valeurs de la colonne « Annuelles » sont celles de la colonnes « Différences » divisées par la durée d'irradiation. La colonne « Normalisées » correspond aux masse annuelles transmutées divisées par la puissance de l'ADS.

réacteur de la première strate, les quantités produites sont plus faibles pour l'association des ADS MUST avec des SFR. Il y a un facteur compris entre 1.5 et 2 de différence entre ces filières. Cet écart est en accord avec l'observation réalisée sur la production de curium.

Si nous comparons des filières dont seul le caloporteur de l'ADS MUST est différent, nous observons plus d'actinides mineurs créés avec un caloporteur sodium. Il y a entre 1.3 et 2 fois moins d'actinides mineurs produits dans les filières composées d'ADS refroidis au plomb. C'est la production de curium qui diffère entre les deux cas. L'isotope le plus abondant, le ^{245}Cm , est produit indirectement par la capture neutronique de l' ^{243}Am . L'américium étant très abondant, plus le flux neutronique est important, plus le nombre de noyaux d' ^{243}Am capturant des neutrons augmente. Or, le flux neutronique dans un ADS à caloporteur sodium est plus de 1.5 fois plus important que dans un ADS refroidi au plomb. Donc, la quantité de ^{245}Cm produite est plus faible dans ce dernier.

Nous observons également une corrélation entre la durée d'irradiation et la création d'actinides mineurs. Cette relation s'explique par un allongement de la période durant laquelle s'effectuent les captures neutroniques à la base de la production de curium. Pour des filières similaires ayant pour différence seulement la durée d'irradiation, les écarts de masse sont de l'ordre de quelques kilogrammes et de la centaine de kilogrammes respectivement pour la transmutation de l'américium seul et de tous les actinides.

Deuxièmement, nous pouvons analyser l'influence de la durée d'irradiation, du type de caloporteur de l'ADS et de la stratégie de transmutation, sur les masses transmutes suivant les filières.

Il est logique d'avoir une corrélation entre le temps d'irradiation et la masse transmutée (expression 1.4). Pour des filières dont l'unique différence est cette durée, les puissances thermiques des réacteurs sont du même ordre de grandeur et par conséquent le nombre de fissions par seconde également. Donc, plus la durée d'irradiation du cœur est longue, plus la masse de noyaux transmutés augmente. Avec 2 ans de plus d'irradiation, environ 800 kg supplémentaires sont transmutés dans un système à caloporteur plomb et plus d'une tonne pour ceux refroidis au sodium.

Ensuite, si nous comparons des filières similaires, mais avec des réacteurs sous-critiques refroidis avec du plomb ou du sodium, les résultats sont très éloignés. Il y a plus de 1.5 fois plus d'actinides mineurs transmutés dans les réacteurs à caloporteur sodium. Pour les filières transmutant l'ensemble des actinides mineurs, ce facteur correspond aux différences de puissances des deux types de système. Pour les autres filières, une partie de la masse des actinides comptabilisée comme transmutée produit des éléments lourds considérés comme des déchets, comme par exemple l' ^{243}Am qui forme du ^{244}Cm . Alors la disparition de ces noyaux d'américium ne conduit pas à une fission. Donc pour ces filières, le rapport des masses transmutes dans un réacteur à caloporteur sodium et plomb ne correspond pas totalement à celui de leurs puissances, mais il est tout de même très proche.

Puis, pour des filières identiques, nous remarquons une masse transmutée plus importante, si seul l'américium est transmuté, alors que ce sont généralement celles transmutant l'ensemble des actinides mineurs qui ont la puissance la plus élevée. Ces écarts sont de l'ordre de 100 à environ 700 kilogrammes.

Nous pouvons également examiner les différences des masses d'actinides mineurs transmutes et produites.

Ce bilan sur l'ensemble du cycle dépend, bien sûr, des remarques précédentes et confirme l'importance de la durée d'irradiation du cœur. Pour mieux l'estimer, nous pouvons étudier le rapport de ces différences de masses transmutes par la durée d'irradiation. Il montre que les masses transmutes par année en cœur sont relativement proches pour un type d'ADS. Les réacteurs à caloporteur plomb transmutent environ $350 \text{ kg}\cdot\text{an}^{-1}$ et ceux refroidis avec du sodium autour de $550 \text{ kg}\cdot\text{an}^{-1}$. L'écart entre ces deux types de système est lié aux importantes différences de puissance.

Les différences de masses produites et transmutes sur l'ensemble du cycle ont des valeurs du même ordre pour les deux stratégies de transmutation. Donc, les écarts observés entre les masses produites et transmutes suivant la stratégie s'équilibrent.

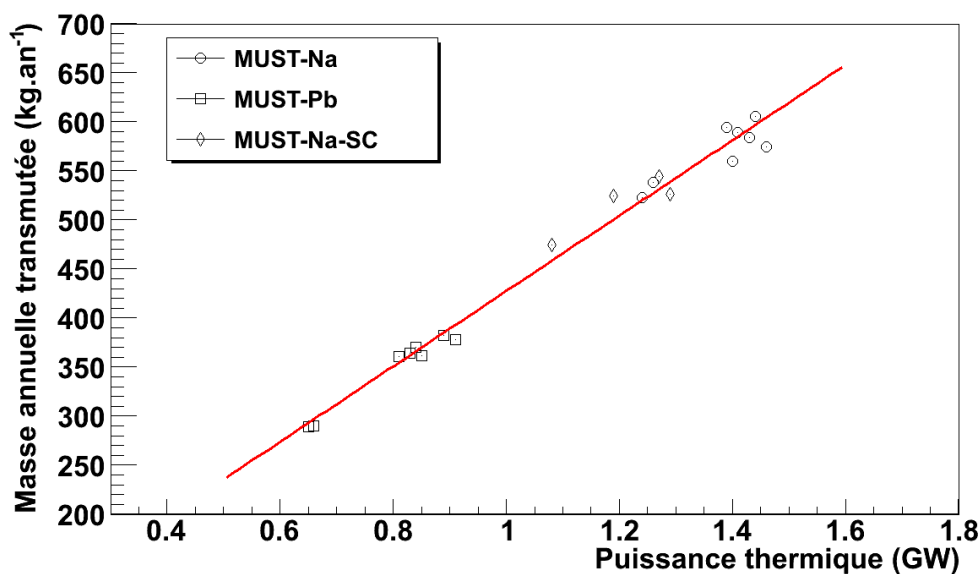


Figure 5.12: Masse annuelle transmutée en fonction de la puissance thermique de l'ADS pour les différentes filières. Les cercles et les carrés sont les valeurs obtenues pour les ADS MUST munis d'assemblages de contrôle à caloporteur sodium et plomb, les losanges correspondent aux résultats des réacteurs sans assemblage de contrôle. La droite est un ajustement linéaire de l'ensemble des valeurs.

Pour mettre en évidence la relation avec la puissance thermique du réacteur, nous représen-

tons la masse annuelle transmutée obtenue pour chacune des filières en fonction de la puissance thermique de l'ADS MUST (figure 5.12). Nous observons clairement la corrélation entre la quantité d'actinides mineurs transmutée et la puissance du cœur. L'ensemble des résultats obtenus sont proches de la droite d'ajustement.

De plus, si nous normalisons la masse annuelle transmutée par la puissance du réacteur, nous pouvons comparer le potentiel de transmutation des ADS à caloporteur plomb et sodium pour une puissance équivalente. Les valeurs obtenues pour les réacteurs refroidis au plomb sont comprises entre 416 et 446 $\text{kg}\cdot\text{GW}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ et celles des systèmes à caloporteur sodium sont comprises dans un intervalle de 394 et 441 $\text{kg}\cdot\text{GW}^{-1}\cdot\text{an}^{-1}$ (voir tableau 5.16). Les résultats sont par conséquent du même ordre de grandeurs. Donc, pour une puissance installée identique, les d'ADS MUST ont des potentiels de transmutation relativement semblables.

5.2 Évolution du k_{eff}

Lors de l'irradiation, l'évolution du combustible a tendance à faire augmenter la réactivité du cœur (voir figure 4.18). Pour cette raison, nous avons étudié deux approches permettant de maintenir la sous-criticité des ADS MUST. La première consiste à compenser l'augmentation du k_{eff} par l'utilisation d'assemblages de contrôle contenant du B_4C . La deuxième technique est le démarrage de l'irradiation avec un coefficient de multiplication d'environ 0.95.

Dans cette partie, nous allons donc vérifier la conservation de la sous-criticité des ADS MUST avec ces deux méthodes.

5.2.1 Avec assemblages de contrôle

Pour les systèmes composés d'assemblages de contrôle, le programme MURE ajuste leur position axiale à chaque pas d'évolution afin de maintenir un k_{eff} proche de 0.97.

Les figures 5.13 et 5.14 sont les évolutions des coefficients de multiplication au cours de l'irradiation des différentes filières. Les résultats obtenus montrent bien l'efficacité des assemblages de contrôle pour le maintien de la sous-criticité.

Bien sûr, l'estimation de la position des barres de B_4C n'est pas parfaite et dépend notamment du temps de calcul associé. Nous observons de légères oscillations, mais les variations autour de 0.97 sont inférieures au pour cent. Le contrôle des ADS MUST tout au long de l'irradiation est donc vérifié.

Il est intéressant d'examiner le taux d'enfoncement des assemblages de contrôle sur les figures 5.15 et 5.16. Pour tous les ADS étudiés, nous observons l'utilisation de seulement 50 % de leur longueur. Il y a donc un potentiel d'antiréactivité important par rapport à l'élévation du k_{eff} .

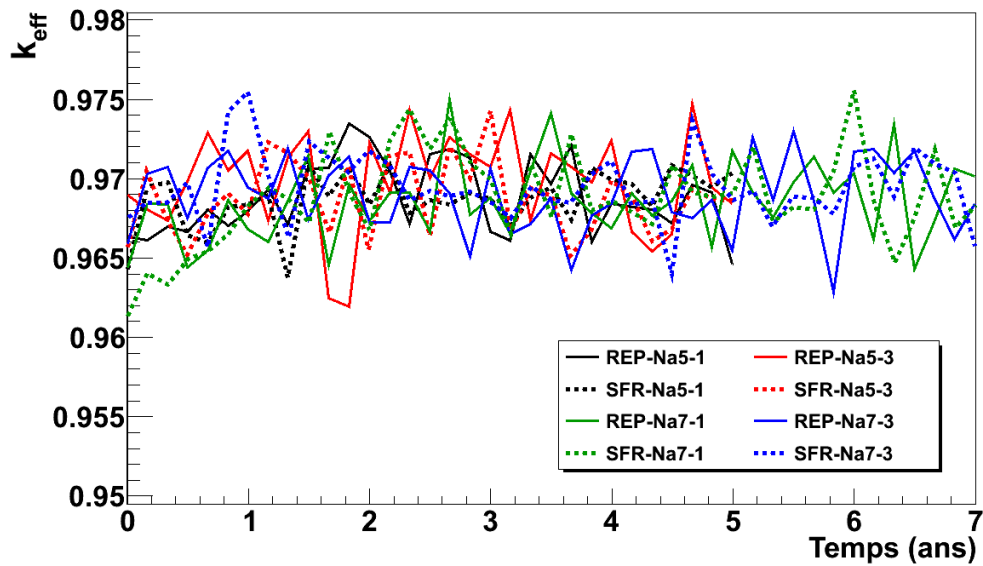


Figure 5.13: Évolution du coefficient de multiplication au cours de l'irradiation d'un ADS MUST à caloporteur sodium avec des assemblages de contrôle.

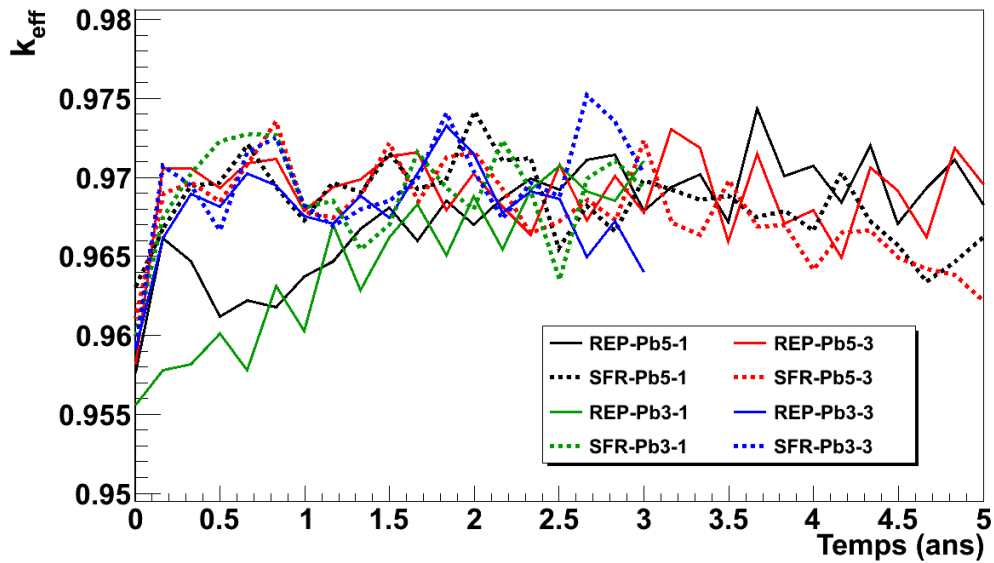


Figure 5.14: Évolution du coefficient de multiplication au cours de l'irradiation d'un ADS MUST à caloporteur plomb avec des assemblages de contrôle.

Le nombre d'assemblages de contrôle pourrait être diminué, si le maintien du coefficient de multiplicité proche de 0.97 reste assuré. Sinon, le surdimensionnement du nombre d'assemblages de contrôle peut permettre de diminuer l'enrichissement en ^{10}B . En effet, nous l'avons considéré à 90 %, or un tel enrichissement a un coût. Donc, une diminution de l'enrichissement est une option envisageable.

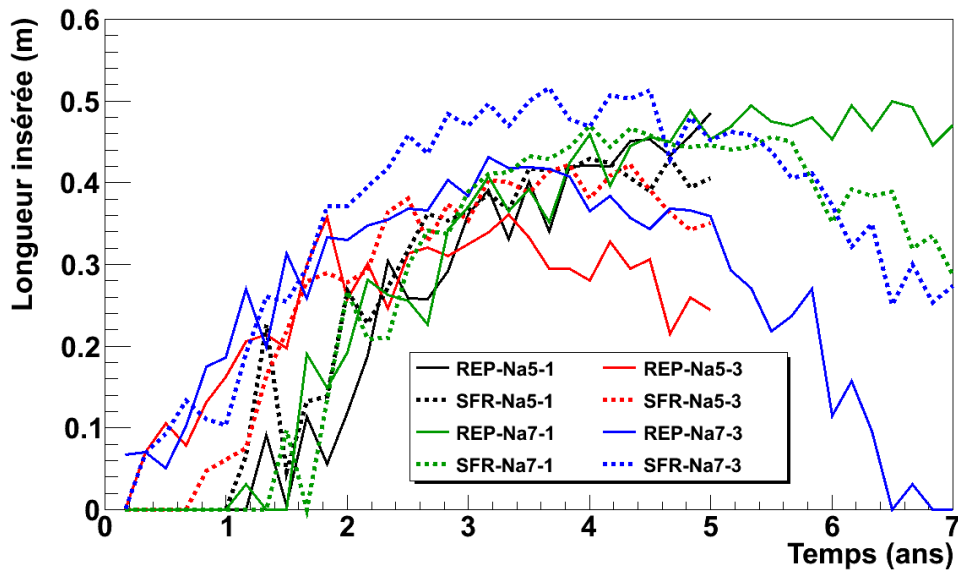


Figure 5.15: Évolution de la longueur d'insertion des assemblages de contrôle au cours de l'irradiation des ADS MUST à caloporteur sodium.

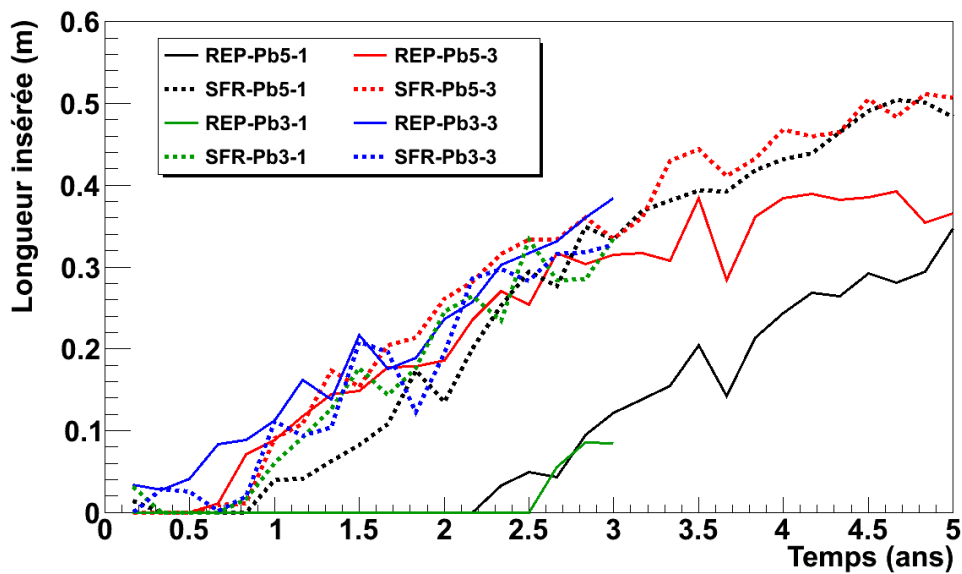


Figure 5.16: Évolution de la longueur d'insertion des assemblages de contrôle au cours de l'irradiation des ADS MUST à caloporteur plomb.

Nous remarquons également, que pour la plupart des filières la longueur d'insertion des assemblages de contrôle augmente régulièrement au cours des 3 premières années. Ensuite, en fonction des filières, elle peut continuer à augmenter, rester relativement constante ou diminuer.

Mais dans certains cas, l'insertion des assemblages de contrôle est effectuée plus tardive-

ment. Par exemple, pour la filière REP-Pb5-1, les assemblages de contrôle sont utilisés seulement après plus de 2 ans d'irradiation.

Cette observation correspond aux filières dont le coefficient de multiplication initial est très inférieur à 0.97. C'est le cas de celles, dont nous avons fait le choix de ne pas diminuer la proportion de MgO lors du calcul du troisième combustible à l'équilibre, partie 4.9. Cette décision a été prise car la matrice inerte est le principal vecteur de refroidissement du combustible. La puissance du cœur a été déterminée avec une certaine proportion de MgO dont la diminution risquerait d'engendrer un dépassement de la température de fonctionnement des crayons.

5.2.2 Sans assemblage de contrôle

L'évolution des ADS MUST sans assemblage de contrôle, figure 5.17, montre bien une augmentation du coefficient de multiplication au cours du temps. Mais il reste inférieur à 0.982 pour tous les cas étudiés. Le caractère sous-critique de l'ADS est donc conservé, sans l'utilisation d'assemblages de contrôle, à condition de démarrer l'irradiation avec un k_{eff} d'environ 0.95.

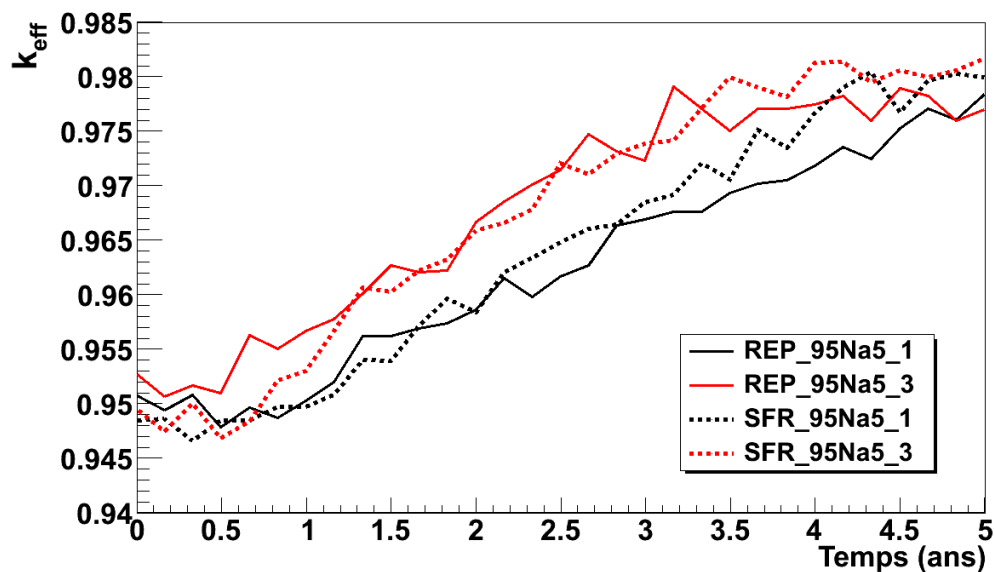


Figure 5.17: Évolution du coefficient de multiplication au cours de l'irradiation d'un ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle.

5.2.3 Augmentation de la réactivité

En appliquant la méthode utilisée dans la partie 4.5.5, nous pouvons étudier les raisons de l'augmentation du k_{eff} .

Les histogrammes 5.18 et 5.19 sont les bilans neutroniques obtenus pour les filières REP-Na5-3 et REP-Na5-1 avec le troisième combustible à l'équilibre associé. Les gains en bleu correspondent à la différence entre les neutrons produits et absorbés par un isotope (expression 4.5). Le bilan est la différence entre les gains en fin et en début de cycle.

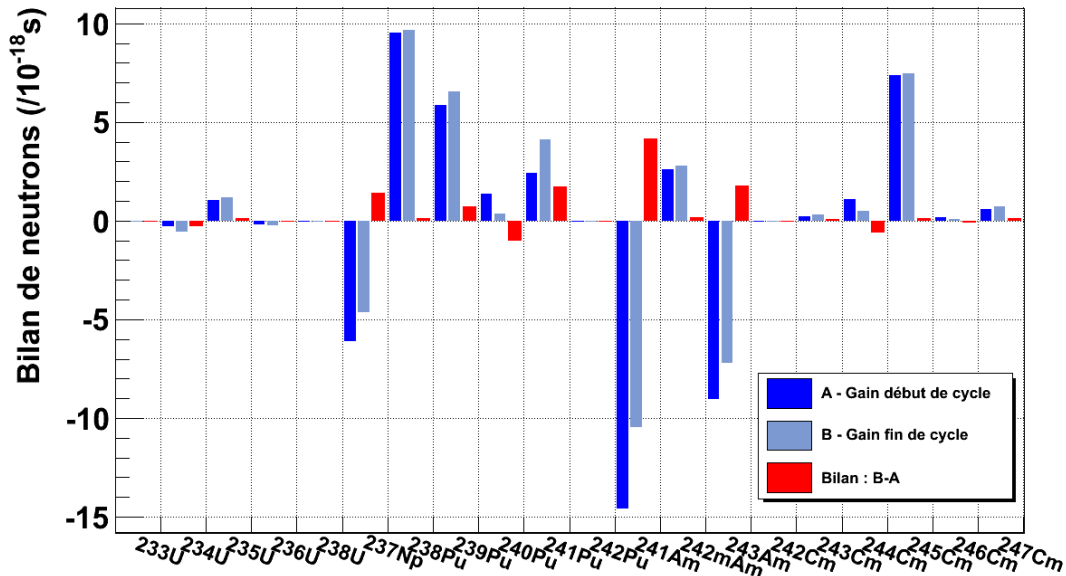


Figure 5.18: Gain neutronique en début G_{Di} (en bleu foncé à gauche) et fin G_{Fi} (en bleu clair au centre) de cycle d'irradiation pour les principaux isotopes de noyaux lourds. La valeur en rouge (à droite) est leur différence. Ces résultats sont obtenus pour la filière REP-Na5-3.

Pour la filière REP-Na5-3, nous observons des gains positifs pour le plutonium, principalement pour le ²³⁸Pu, le ²³⁹Pu et le ²⁴¹Pu. Le ²⁴⁵Cm produit également plus de 7 neutrons en 10⁻¹⁸ seconde. Inversement le ²³⁷Np, l'²⁴¹Am et l'²⁴³Am ont des gains très négatifs.

Comme lors de l'étude effectuée pour cette filière, avec le premier combustible à l'équilibre (partie 4.5.5), nous observons des bilans positifs pour le plutonium (hormis le ²⁴⁰Pu), le neptunium et l'américium. Cette fois-ci, les valeurs obtenues pour l'²⁴¹Am et l'²⁴³Am sont les plus importantes. La forte diminution du nombre de neutrons absorbés par l'américium et la légère augmentation des neutrons produits par le plutonium, sont ainsi les principales explications de l'augmentation du coefficient de multiplication.

L'histogramme 5.19 montre également que le plutonium produit des neutrons et que l'²⁴¹Am et l'²⁴³Am ont des gains négatifs. Par contre, pour cette filière transmutant seulement l'américium, l'influence des autres actinides mineurs est nulle en début de cycle. Mais en fin d'irradiation, les ²⁴⁴Cm et ²⁴⁵Cm produisent des neutrons. Le bilan de l'américium est également positif. L'augmentation du k_{eff} est donc liée à la diminution du nombre de neutrons absorbés

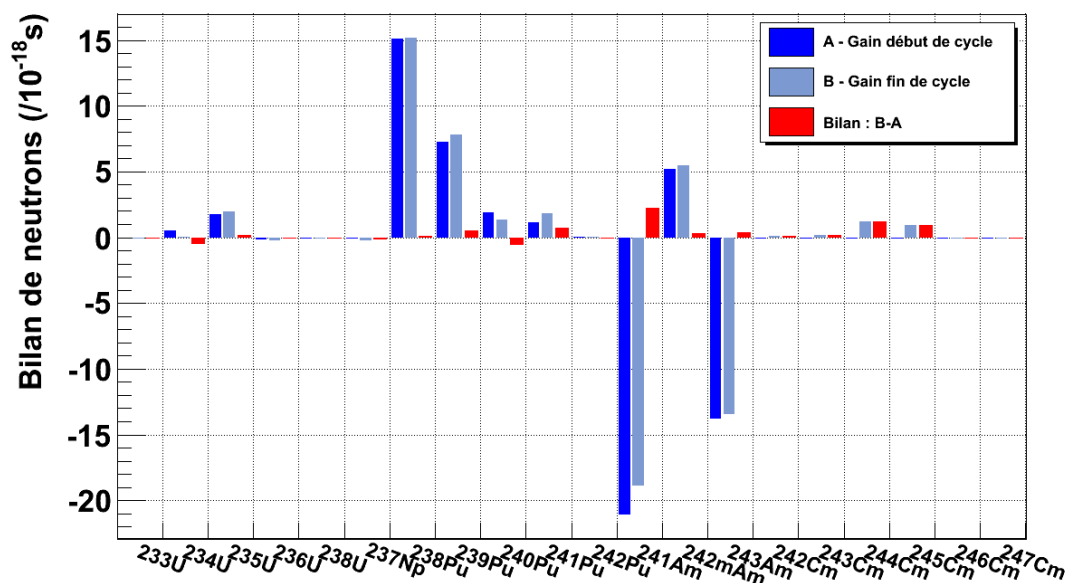


Figure 5.19: Gain neutronique en début G_{Di} (en bleu foncé à gauche) et fin G_{Fi} (en bleu clair au centre) de cycle d'irradiation pour les principaux isotopes de noyaux lourds. La valeur en rouge (à droite) est leur différence. Ces résultats sont obtenus pour la filière REP-Na5-1.

par l'américium et à la production de neutrons par le curium.

5.3 Caractéristiques des déchets produits

5.3.1 Radioactivité

Il est intéressant de comparer la radiotoxicité des déchets, définie dans la partie 1.3.6, produits par les ADS MUST en fonction de la stratégie de transmutation et du type de réacteurs composant la première strate. Pour cela, nous étudierons les filières avec un ADS MUST à caloporteur sodium et sans assemblage de contrôle.

Nous connaissons l'inventaire du combustible après 5 ans d'irradiation et 7 ans de refroidissement. À l'aide du programme MURE, nous pouvons alors extraire les éléments recyclés (uranium, plutonium et les actinides destinés à la transmutation), puis le code calcule la radiotoxicité du combustible restant qui correspond aux déchets ultimes.

Pour cela, l'ensemble des isotopes du combustible ainsi que leurs descendants sont pris en compte. Le programme résout l'équation 3.9 avec une technique d'inversion de matrice afin de déterminer l'évolution de la quantité de chaque isotope en fonction du temps et donc de leur activité. La radiotoxicité associée est alors calculée à partir des valeurs de facteur de dose tabu-

lées dans une base de données [54].

Pour les filières REP-95Na-3 et SFR-95Na-3, tous les actinides mineurs sont séparés avec l'uranium et le plutonium. Par contre, pour les filières REP-95Na-1 et SFR-95Na-1, seul l'américium n'est pas considéré comme un déchet.

La figure 5.20 représente l'évolution de la radiotoxicité des déchets ultimes pour les quatre filières sans assemblage de contrôle. La masse correspondante pour chacun des cas est de l'ordre de 12 à 13 tonnes.

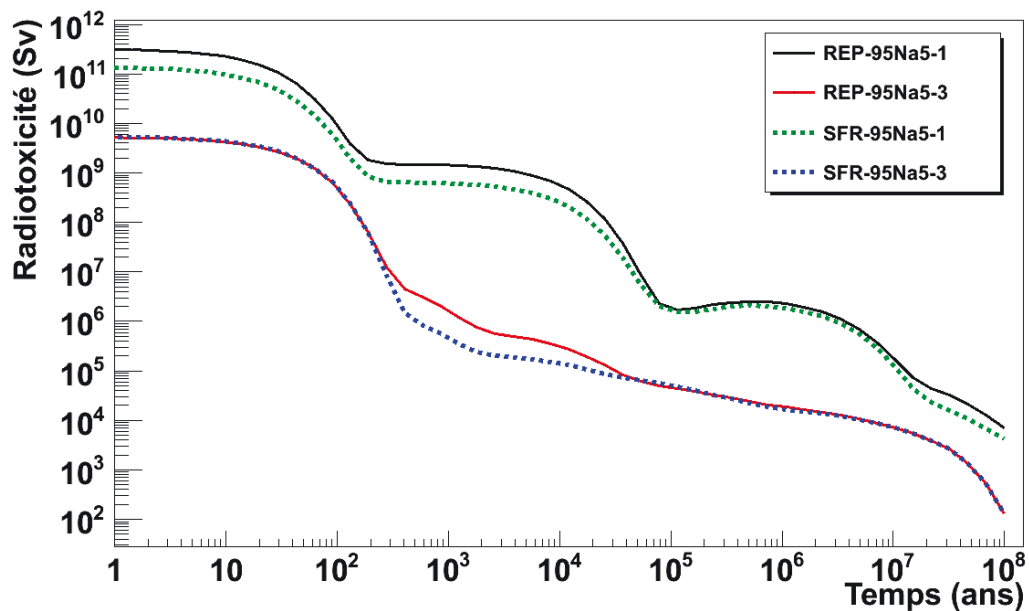


Figure 5.20: Évolution de la radiotoxicité au cours du temps, des déchets ultimes du combustible utilisé d'un ADS MUST des filières REP-95Na-1, REP-95Na-3, SFR-95Na-1 et SFR-95Na-3.

Pour les filières REP-95Na-1 et SFR-95Na-1, la radiotoxicité décroît par palier. Dans un premier temps, ce sont les contributions des produits de fission et du ^{244}Cm qui dominent. Puis, le deuxième palier est lié aux décroissances radioactives principalement du ^{240}Pu produit par le ^{244}Cm et dans une moindre mesure du ^{245}Cm . Enfin, au-delà de la centaine de milliers d'années, le ^{237}Np a un apport important à la radiotoxicité ainsi que les noyaux produits dans la chaîne de décroissance du ^{244}Cm et du ^{245}Cm .

Les filières transmutant l'ensemble des actinides mineurs ont des courbes différentes. La radiotoxicité diminue rapidement après quelques centaines d'années avec la décroissance des produits de fission. Ensuite, la diminution est plus régulière.

Nous observons, donc, un grand écart entre les résultats obtenus suivant la stratégie de transmutation des actinides mineurs. Les premières années, les filières transmutant seulement

l'américium ont des valeurs près de 30 à 60 fois supérieures. Puis, elles sont plus de mille fois supérieures au bout de 1200 ans.

Pour le stockage, ces différences sont en défaveur des scénarios où seul l'américium est transmuté, car l'un des objectifs de l'incinération des actinides mineurs est la diminution de la radiotoxicité des déchets.

5.3.2 Puissance thermique

Un autre critère pour le stockage des déchets est leur puissance thermique. Cette chaleur résiduelle est due à l'énergie déposée dans la matière par les particules émises lors des désintégrations radioactives. Pour optimiser leur conditionnement et la surface de stockage, il est préférable qu'elle soit la plus faible possible.

Nous repartons des déchets dont nous avons réalisé l'étude de la radiotoxicité (voir partie 5.3.1) et nous calculons la puissance thermique libérée avec le code MURE. La chaleur résiduelle est déterminée de la même manière que la radiotoxicité (expression 1.6) mais en remplaçant le facteur de dose par un facteur de chaleur qui s'exprime en $W \cdot Bq^{-1}$.

La figure 5.21 représente les évolutions de cette puissance au cours du temps pour les déchets ultimes des filières REP-95Na-1, REP-95Na-3, SFR-95Na-1 et SFR-95Na-3.

Nous observons, pour toutes les courbes, une première période d'une centaine d'années avec une faible décroissance. Puis, il y a une forte diminution, avant une nouvelle phase avec une pente plus douce.

Nous remarquons de fortes similitudes pour les filières suivant les mêmes stratégies de transmutation. Par contre, les valeurs sont très différentes si l'ensemble des actinides mineurs est transmuté ou non.

Les premières années, la puissance thermique libérée par les déchets des filières transmutant seulement l'américium est 100 fois plus élevée que celle des filières incinérant l'ensemble des actinides mineurs. Pour les filières REP-95Na-1 et SFR-95Na-1, elle atteint des valeurs équivalentes à celles de départ des deux autres filières, après plus de 100 ans.

Ces écarts sont principalement corrélés à la présence de ^{244}Cm , dans les déchets des filières incinérant uniquement l'américium, qui conditionne la première phase. Puis, la contribution dominante est celle du ^{240}Pu issu de la décroissance du ^{244}Cm .

Par contre, pour les autres filières, la puissance dégagée est liée aux produits de fissions dont l'activité diminue fortement après quelques centaines d'années.

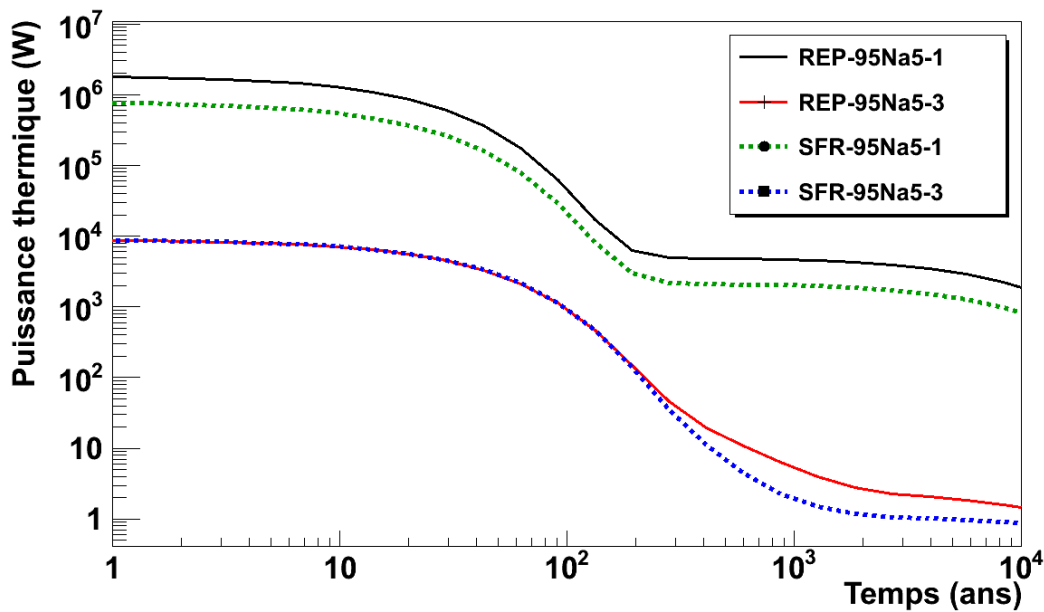


Figure 5.21: Évolution de la puissance thermique au cours du temps, des déchets ultimes du combustible utilisé d'un ADS MUST des filières REP-95Na-1, REP-95Na-3, SFR-95Na-1 et SFR-95Na-3.

Nous pouvons donc conclure qu'il y a environ deux ordres de grandeur, au cours du premier siècle, entre les puissances résiduelles des déchets produits par les filières transmutant l'ensemble des actinides et celles incinérant uniquement l'américium.

5.4 Étude simplifiée de scénarios

Cette étude étant effectuée dans le cadre de la loi française (voir 1.4), nous allons étudier une évolution possible du parc national. L'objectif est d'évaluer le potentiel de la transmutation dans des scénarios double strate décrits dans la sous-partie 2.4.2.

Dans un premier temps, nous présenterons les réacteurs composant le parc et son évolution. Puis, nous estimerons de manière très simplifiée, le nombre d'ADS nécessaire pour la mise en place des deux stratégies de transmutation abordées.

5.4.1 Composition du parc nucléaire

Comme nous l'avons présenté dans la partie 2.4.2, nous allons étudier une évolution du parc nucléaire français à puissance électrique constante de 60 GW. Ce scénario de référence commence par le remplacement de 40 GW électrique produit par les REP existants par des EPR. Puis, après 2040, les réacteurs déployés sont des SFR.

Les réacteurs dédiés à la production électrique sont accompagnés d'une deuxième strate constituée d'ADS MUST transmutateurs d'actinides mineurs. Ces systèmes sont déployés à partir de 2050, pour incinérer les actinides mineurs produits par les SFR. Nous étudierons des scénarios utilisant les ADS MUST à caloporteur sodium sans assemblage de contrôle.

L'impact de deux stratégies de transmutation est étudié. La première correspond à la transmutation de l'ensemble des actinides mineurs, et la seconde à celle de l'américium seul.

5.4.2 Hypothèses

Dans cette partie, nous effectuons une étude très simplifiée des scénarios. Nous supposerons un multirecyclage du plutonium dans les combustibles des ADS MUST et des SFR. Cette gestion est mise en place dans la première strate, un cycle avant 2050, de manière à commencer la transmutation en ADS MUST à cette date.

Cette hypothèse est considérée afin de stabiliser la quantité de plutonium et ainsi d'optimiser le gain sur la radiotoxicité à long terme des déchets, par transmutation des actinides mineurs.

Nous supposerons que les actinides mineurs produits avant 2050 sont des déchets ultimes. Nous chercherons ainsi à limiter l'accumulation dans le parc nucléaire de ceux générés après cette date.

Nous considérons ici uniquement les masses d'actinides mineurs produites ou transmutes annuellement par les SFR et les ADS MUST, à partir de 2050. Les actinides mineurs produits par les EPR ne sont pas transmutés par les réacteurs sous-critiques. Les quantités générées en SFR sont celles recensées dans le tableau 2.4. Les masses engendrées et transmutes par les ADS sont celles définies dans le tableau 5.16.

Nous supposerons l'inventaire de plutonium en stock suffisant et avec une composition isotopique permettant le déploiement des nouveaux réacteurs. En réalité, des stratégies de gestion du combustible et des réacteurs devront probablement être mises en place pour anticiper la fabrication du combustible des SFR et des ADS.

5.4.3 Estimation du nombre d'ADS MUST pour le scénario de référence

Il est intéressant d'estimer le nombre d'ADS à déployer pour transmuter les actinides mineurs produits par les SFR lors des deux périodes durant lesquels les réacteurs du parc nucléaire ne changent plus durant plusieurs décennies. Nous étudierons la transmutation en ADS en 2050 et 2100.

Les masses annuelles produites et transmutes dans les ADS MUST, suivant la filière mise en place, correspondent aux valeurs recensées dans le tableau 5.17. Les quantités d'actinides mineurs produites par les SFR en 2050 et 2100 sont données dans le tableau 5.18 avec le nombre d'ADS MUST nécessaire à leur transmutation.

Filières	Masses annuelles d'actinides mineurs	
	Produites ($\text{kg}\cdot\text{an}^{-1}$)	Transmutes ($\text{kg}\cdot\text{an}^{-1}$)
SFR-95Na5-1	79	604
SFR-95Na5-3	6	550

Tableau 5.17: Bilan des masses annuelles d'actinides mineurs produites et transmutes au cours du cycle pour les filières.

Années	Masses annuelles produites en SFR		Nombre d'ADS MUST	
	Am seul ($\text{kg}\cdot\text{an}^{-1}$)	Np, Am, Cm ($\text{kg}\cdot\text{an}^{-1}$)	SFR-95Na5-1	SFR-95Na5-3
2050	692	808	1.1	1.5
2100	2076	2424	3.4	4.4

Tableau 5.18: Masses annuelles d'actinides mineurs produites et nombre d'ADS MUST nécessaire pour les transmuter suivant la filière mise en place.

Ainsi, en 2050 la transmutation de l'américium seul peut être réalisée avec environ 1 ADS MUST fonctionnant à pleine puissance. Par contre, cette stratégie s'accompagne de l'accumulation de près 200 kg par an de neptunium et de curium dont plus de 40 % sont issus des réacteurs sous-critiques eux mêmes.

Puis l'américium produit, lorsque la première strate est entièrement constituée de SFR, demande le déploiement d'un peu plus de 3 réacteurs sous-critiques. Les masses de neptunium et de curium produites sont alors de l'ordre de 620 kg par an.

Dans le cas de la transmutation de l'ensemble des actinides mineurs, 1.5 ADS MUST fonctionnant à pleine puissance sont nécessaires en 2050 et un peu plus de 4 en 2100. Avec cette stratégie, les actinides excédentaires produits sont seulement de l'ordre de 10 et 30 kg. Ces derniers correspondent au curium légèrement créé au cours du cycle des ADS MUST. Il est donc possible de transmuter l'ensemble des actinides mineurs avec moins de 5 ADS MUST et de diminuer ainsi fortement leur quantité mise aux déchets.

Les études de scénarios double strate similaires réalisées précédemment ont montrées qu'il fallait environ 15 ADS EFIT pour transmuter l'ensemble des actinides mineurs. Il est donc

possible de diminuer grandement le nombre de réacteurs sous-critiques de la seconde strate avec le concept d'ADS MUST. Cependant, il faudrait étudier plus précisément ces scénarios, avec un code dédié à ce type de calcul, afin de prendre en compte plus en détails l'ensemble des paramètres mises jeu, comme cela a été réalisé avec le concept d'ADS EFIT.

Conclusion

Au vu de la situation énergétique mondiale, une transition des modes de production semble prévisible. L'énergie nucléaire pourrait potentiellement être utilisée pour répondre à une partie des besoins en électricité. Mais, ce type de production demande notamment une réflexion sur la gestion des déchets radioactifs générés.

La France a fortement développé l'énergie nucléaire depuis les années 1980. Elle est donc particulièrement concernée par les problématiques liées aux déchets. Son parlement a voté, en 1991 et 2006, deux lois définissant les orientations des recherches relatives à la gestion des déchets radioactifs de haute activité et à vie longue.

Les études présentées dans ce manuscrit ont été réalisées dans le cadre de l'évaluation scientifique de la transmutation des actinides mineurs en ADS dans des scénarios nommés double strate. Ces derniers considèrent un parc nucléaire constitué de deux niveaux de réacteurs. Le premier dédié à la production d'électricité est composée de REP ou de RNR. Les actinides mineurs produits par ces réacteurs sont alors transmutés avec les ADS de la deuxième strate du parc. Un résumé des résultats obtenus sera intégré au rapport final qui sera remis au parlement fin 2012.

Nous avons présenté dans ce manuscrit un nouveau concept théorique de réacteur sous-critique développé au cours de ces travaux de thèse et appelé ADS MUST. Ce système basé sur l'utilisation de plusieurs cibles de spallation permet d'atteindre des puissances thermiques importantes afin de transmuter une grande quantité d'actinides mineurs dans un seul réacteur sous-critique.

Nous avons décrit la méthode appliquée pour dimensionner ces ADS. Elle nous a permis de déterminer les principales caractéristiques du cœur et le combustible à l'équilibre de plusieurs filières. Ces dernières sont définies par le type de réacteurs de la première strate (REP ou SFR), la stratégie de transmutation (l'américium seul ou tous les actinides mineurs), le type de caloporteur (sodium ou plomb) de l'ADS ainsi que sa durée d'irradiation et la technique de gestion de la réactivité. Au total, 20 filières différentes ont été étudiées.

Le combustible à l'équilibre des ADS, de chacune des filières, ne produit pas plus de plutonium que la quantité nécessaire à la fabrication d'un combustible neuf. Ainsi, cet élément ne

s'accumule pas dans les stocks du parc nucléaire et le gain sur la radiotoxicité à long terme des déchets est optimisé.

Deux approches ont été suivies pour la gestion de la réactivité du cœur, avec ou sans assemblage de contrôle. Dans les deux cas, le maintien du caractère sous-critique du réacteur a été vérifié.

La puissance des ADS MUST obtenue pour les différentes filières dépend grandement du caloporteur du réacteur sous-critique. Elle est comprise entre 1 et 1.5 GW pour ceux refroidis au sodium, alors que la valeur la plus élevée pour un ADS à caloporteur plomb est de l'ordre de 0.9 GW. Cependant, il est certainement possible d'optimiser leur potentiel avec une étude de dimensionnement spécifique plus approfondie.

L'intensité du faisceau de protons principal permettant d'obtenir des puissances élevées pour les ADS à caloporteur sodium est d'environ 35 à 50 mA pour les concepts munis d'assemblages de contrôle et peut aller jusqu'à 81 mA pour ceux n'en n'utilisant pas. La faisabilité du maintien de telles valeurs sur l'ensemble de la durée de l'irradiation sera un des défis technologiques du développement de ce type de système. En comparaison, l'intensité nécessaire pour alimenter les ADS MUST à caloporteur plomb est de l'ordre de la vingtaine de milliampères.

Plusieurs pistes peuvent être suivies pour l'optimisation du dimensionnement des ADS MUST. Par exemple, le modèle utilisé lors des calculs de thermo-hydraulique est relativement simplifié. Cette étape du dimensionnement pourrait donc faire l'objet d'une étude plus précise. Une approche hétérogène du combustible est également à étudier afin d'améliorer la distribution du flux neutronique dans le cœur et ainsi envisager d'optimiser un peu plus l'homogénéité de la densité de puissance du réacteur. Enfin, de manière générale, une étude des incertitudes liées aux différents calculs permettrait de mieux évaluer la précision des résultats obtenus.

La principale raison de l'étude des ADS MUST est leur potentiel de transmutation des actinides mineurs. La quantité d'actinides mineurs transmutée est directement liée à la puissance du cœur, elle est donc différente pour chaque filière. Néanmoins, il est possible de donner des ordres de grandeur en fonction du caloporteur de l'ADS MUST. Ainsi, un réacteur refroidi au plomb incinère une masse de l'ordre de 350 kg par année d'irradiation, et un ADS à caloporteur sodium transmute environ 550 kg sur une durée équivalente. Ces quantités sont de l'ordre de 5 à 10 % de la masse initiale d'actinides mineurs en cœur.

Une première strate de 60 GW électrique, à l'équilibre, de SFR multi-recyclant le plutonium, produit environ 2.4 tonnes d'actinides mineurs par an, dont 2.1 tonnes d'américium. Donc, pour le scénario simplifié étudié, suivant la stratégie de transmutation mise en place, il faut de l'ordre de 6 à 7 ADS MUST à caloporteur plomb ou environ 3 à 4 refroidis au sodium, pour stabiliser la masse d'actinides mineurs dans le parc électronucléaire.

Des études plus précises de scénarios pourraient être réalisées avec le code de simulation CLASS en cours de développement au laboratoire SUBATECH de Nantes. Il serait ainsi possible d'évaluer de manière plus réaliste l'évolution du parc et de ses inventaires.

Il serait également intéressant d'étudier d'autres types de scénarios. Nous avons, par exemple,

supposé une production constante d'électricité d'origine nucléaire, mais une augmentation ou une diminution de celle-ci pourrait être envisagée. De même, les réacteurs constituant la première strate pourraient être composés de systèmes différents de ceux étudiés dans le cadre de cette étude comme, par exemple, des réacteurs de quatrième génération autre que les SFR.

Enfin, si une sortie du nucléaire est décidée, les réacteurs en fin d'exploitation contiendront une forte masse de plutonium. Or, la radiotoxicité de cet élément et de ses descendants est élevée sur une durée supérieure à plusieurs centaines de milliers d'années. Il pourrait alors être envisageable d'utiliser les ADS afin de transmuter le plutonium avec les actinides mineurs et diminuer ainsi leurs quantités. Des études pourraient donc être menées afin de vérifier la faisabilité de cette stratégie.

Annexe A

Étude de sûreté

La problématique de sûreté pour les ADS est certainement différente de celle des réacteurs critiques. Il est tout de même important de connaître l'influence de différents paramètres sur le comportement du cœur. Nous étudierons ainsi la part de neutrons retardés afin d'estimer la vitesse de variation de la réactivité du réacteur. L'effet de changement de température du combustible ou encore de vidange du caloporteur seront également abordés.

L'ensemble des simulations décrites ici est effectué avec le combustible à l'équilibre en début de cycle obtenu dans la partie 4.9 et les assemblages de contrôle en positionnement de début de cycle, c'est à dire enfoncés de 20 cm. De plus, la démarche adoptée pour l'étude des différentes caractéristiques des ADS est une approche globale du cœur.

A.1 Fraction de neutrons retardés

Dans un réacteur critique, la présence de neutrons retardés permet le pilotage du cœur en limitant la vitesse de variation de sa réactivité. Ces neutrons sont émis lors de la désexcitation β^- de certains produits de fission. Leurs délais d'émission diffèrent pour chacun des noyaux, et peut varier entre des temps de l'ordre de la milliseconde à la minute. Une autre particularité de ces neutrons est une énergie d'environ 0.2 à 0.6 MeV. En comparaison, pour les neutrons prompts émis au moment de la fission, elle est de l'ordre de 2 MeV.

Pour estimer l'influence des neutrons retardés sur la réactivité du cœur, nous déterminons à l'aide de l'équation A.1 la fraction de neutrons retardés β_{eff} . Il correspond au rapport des coefficients de multiplication sans prise en compte de l'apport des neutrons retardés k_{prompt} et avec tous les neutrons k_{eff} . Le β_{eff} prend ainsi en compte l'ensemble des effets de ces particules comme leur nombre par génération mais également leur efficacité à produire des fissions.

$$\beta_{eff} = 1 - \frac{k_{prompt}}{k_{eff}} \quad (A.1)$$

La nature des neutrons retardés dépend des produits de fission et par conséquent des noyaux

précurseurs. Ils sont donc, de ce fait, liés à la composition du combustible. De plus, leurs énergies étant inférieures à celles des neutrons prompts, leurs effets dépendent également du spectre du réacteur.

Ainsi, la fraction de neutrons retardés est de l'ordre de 0.007 pour un REP [85]. Pour des SFR, le β_{eff} est d'environ 0.004 pour un combustible composé d'un mélange d'oxyde d'uranium et de plutonium [35], et de l'ordre de 0.003 avec un combustible de transmutation homogène contenant quelques pour cent d'actinides mineurs [86]. La faible quantité de neutrons retardés observée pour ces derniers rend leur pilotage plus complexe.

L'évaluation du β_{eff} pour un ADS EFIT, utilisant un combustible composé d'environ 50 % d'actinides mineurs, est de 0.0015 [31]. Cette très faible part de neutrons retardés impose un fonctionnement de ces réacteurs sous-critiques avec un k_{eff} suffisamment inférieur à 1.

Pour estimer la fraction de neutrons retardés dans les concepts ADS MUST, deux calculs sont effectués avec le programme MCNPX en utilisant une source critique. Le premier permet de déterminer le k_{eff} et le deuxième le k_{prompt} en simulant uniquement les neutrons prompts. Ces deux coefficients étant relativement proches, un nombre de particules et de cycles suffisant doivent être simulés afin d'atteindre une déviation standard de l'ordre de 0.0001.

Le tableau A.1 récapitule les résultats pour les différents systèmes. La fraction de neutrons retardés des ADS MUST est comprise entre 0.001 et 0.002 soit du même ordre de grandeur que l'ADS EFIT. Ces très faibles valeurs sont la conséquence de la forte quantité d'actinides mineurs composant les combustibles. La sous-criticité du système limite les risques d'un fonctionnement avec un faible β_{eff} , mais souligne l'importance d'un coefficient de multiplication suffisamment inférieur à l'unité.

Code de l'ADS MUST	β_{eff}	Code de l'ADS MUST	β_{eff}
REP-Na5-1	0.0015	REP-Pb3-1	0.0011
REP-Na5-3	0.0013	REP-Pb3-3	0.0014
REP-Na7-1	0.0011	REP-Pb5-1	0.0009
REP-Na7-3	0.0014	REP-Pb5-3	0.0015
SFR-Na5-1	0.0017	SFR-Pb3-1	0.0013
SFR-Na5-3	0.0015	SFR-Pb3-3	0.0016
SFR-Na7-1	0.0012	SFR-Pb5-1	0.0013
SFR-Na7-3	0.0010	SFR-Pb5-3	0.0018

Tableau A.1: Taux de neutrons retardés β_{eff} pour des ADS MUST utilisant le combustible de différentes filières en début de cycle.

A.2 Coefficient Doppler

La variation de température au sein du cœur a de nombreux effets sur sa réactivité. Nous allons étudier dans ce paragraphe, la conséquence d'un changement de température du combustible sur le coefficient de multiplication. Nous supposons une fluctuation sur l'ensemble du combustible de l'ADS, suffisamment courte dans le temps pour qu'elle n'influe pas sur les autres composants comme le caloporteur ou les structures.

Une élévation de la température du combustible a pour conséquence d'augmenter l'agitation des noyaux qui le composent. Or, l'interaction entre un neutron et un noyau dépend de leur vitesse relative. Une fluctuation de l'agitation du noyau cible modifie donc les sections efficaces d'interaction. Ce phénomène est communément appelé l'effet Doppler [87].

Son influence sur les interactions dépend de la vitesse de variation des sections efficaces du noyau considéré en fonction de l'énergie. Généralement, ces dernières sont relativement stables pour la diffusion et par conséquent l'effet est faible. Seule la perte d'énergie du neutron incident change légèrement.

Par contre, ce phénomène est nettement plus important pour les réactions d'absorption car les sections efficaces de capture ou de fission varient rapidement. Par exemple, une modification de température peut avoir un impact très fort pour une interaction proche d'une résonance. L'effet Doppler peut donc faire pencher la balance entre la capture neutronique et la fission, et par conséquent modifier la réactivité du cœur.

Afin d'estimer son influence, nous pouvons déterminer D la variation du coefficient de multiplication par Kelvin. Pour cela, nous supposons une variation linéaire du k_{eff} lors d'un changement de température du combustible assez faible. D est alors défini par l'équation A.2 avec k_{1eff} et k_{2eff} les coefficients correspondant aux températures T_1 et T_2 . L'erreur associée dD est calculée avec la formule A.3 à partir des erreurs dk_{1eff} et dk_{2eff} sur les valeurs des coefficients de multiplication.

$$D = \frac{k_{2eff} - k_{1eff}}{T_2 - T_1} \quad (A.2)$$

$$dD = \frac{\sqrt{dk_{2eff}^2 + dk_{1eff}^2}}{|T_2 - T_1|} \quad (A.3)$$

Pour déterminer cette caractéristique, deux simulations sont réalisées, avec le code MCNPX, pour différentes filières avec le combustibles de début de cycle. La prise en compte de la température du combustible dans ce code Monte-Carlo dépend des bases de données disponibles. Celles utilisées pour ces travaux correspondent aux sections efficaces pour les centaines de Kelvin. Le pas en température le plus petit est donc de 100 K.

L'approche suivie pour cette étude est globale, les changements de température sont effectués sur l'ensemble du combustible à partir des caractéristiques typiques des réacteurs refroidis

au sodium [34] et au plomb [88]. Nous calculons donc le k_{eff} pour 1500 et 1600 K pour les systèmes à caloporteur sodium, et entre 1000 et 1100 K pour ceux au plomb.

Les résultats obtenus (tableau A.2) montrent des variations du coefficient de multiplication inférieures à 0.45 pcm par K. L'effet Doppler est donc relativement faible. Cela s'explique par les spectres rapides des ADS MUST, car les résonances des sections efficaces des noyaux correspondent généralement à des interactions avec des neutrons d'énergie inférieure.

L'importance des erreurs rend difficile la définition d'un comportement général de ces réacteurs. Mais, la sous-criticité des ADS limite l'impact de l'effet Doppler sur la sûreté, dans des régimes proches du fonctionnement normal. Sur les 16 cas, 5 sont forcément positifs même en prenant en compte l'erreur. Cela signifie qu'une élévation de la température du combustible s'accompagne d'une augmentation du k_{eff} . Or, par conséquent le réacteur ne va pas s'auto-réguler comme, par exemple, pour les REP. Le seul résultat négatif est obtenu pour la filière REP-Na5-1. L'effet Doppler provoque alors une contre réaction ramenant le cœur vers son fonctionnement normal. Les autres valeurs de D sont trop faibles devant leur erreur pour conclure sur le comportement du réacteur.

Code de l'ADS MUST	D	Erreur	Code de l'ADS MUST	D	Erreur
REP-Na5-1	-0.22	0.15	REP-Pb3-1	0.25	0.14
REP-Na5-3	0.00	0.14	REP-Pb3-3	0.13	0.14
REP-Na7-1	0.01	0.14	REP-Pb5-1	0.11	0.14
REP-Na7-3	0.03	0.15	REP-Pb5-3	-0.01	0.13
SFR-Na5-1	0.16	0.14	SFR-Pb3-1	-0.04	0.14
SFR-Na5-3	0.31	0.14	SFR-Pb3-3	0.29	0.14
SFR-Na7-1	0.08	0.14	SFR-Pb5-1	0.31	0.13
SFR-Na7-3	-0.05	0.14	SFR-Pb5-3	0.06	0.14

Tableau A.2: Variation du coefficient de multiplication et les erreurs associées en pcm par K d'ADS MUST en début de cycle pour différentes filières.

A.3 Changement de densité et vidange du caloporteur

La perte de caloporteur, par exemple liée à une fuite, ou son changement de densité induit par une augmentation de la température ont un impact sur la réactivité du cœur. Il est donc intéressant de connaître l'influence de ces phénomènes sur le comportement des ADS MUST.

L'approche suivie dans ces travaux est l'étude d'un changement global de la quantité de caloporteur dans l'ensemble du cœur. Par exemple, nous ne simulons pas la vidange partielle

d'une zone particulière, d'un certain nombre d'assemblages ou d'une certaine hauteur de la cuve. Le caloporteur est modifié uniformément de façon à estimer le comportement du cœur et non des effets localisés.

Pour cela des calculs sont effectués, avec le code MCNPX utilisant une source critique, pour différentes densités de caloporteur. Le point de départ correspond à 100 % de sa densité de fonctionnement normal, puis des simulations sont réalisées en la diminuant par pas de 10 % jusqu'à 0. Le cœur n'ayant pas de discrétisation axiale, diminuer la densité du caloporteur est équivalent à diminuer sa quantité. Nous obtenons ainsi une idée de l'effet d'une vidange partielle ou totale, et d'un changement d'état du caloporteur des réacteurs en début de cycle.

Pour ces calculs, seule la densité du caloporteur est modifiée. Les paramètres de température ou autres pouvant être impactés par une situation de vidange ne sont pas pris en compte. Par conséquent, les résultats obtenus correspondent à un phénomène court dans le temps, car il est évident qu'une perte de caloporteur trop longue a de fortes conséquences sur le système, à commencer par l'échauffement des crayons de combustible pouvant aller jusqu'à leur fusion. Une étude plus détaillée des effets de vidange du système sera indispensable lors d'une étude plus précise de ce type de système.

Les figures A.1 et A.2 montrent l'évolution des coefficients de multiplication en fonction du pourcentage de la densité de caloporteur en fonctionnement normal. Les déviations standards des k_{eff} sont d'environ 0,001. Il est intéressant d'observer un comportement relativement proche pour les deux types de caloporteur, même si les valeurs sont très différentes. En effet, si l'on étudie les courbes en partant de la densité de fonctionnement (100 %), le k_{eff} augmente et atteint un maximum, puis diminue jusqu'à une valeur généralement équivalente ou inférieure à celle de départ, pour une vidange complète.

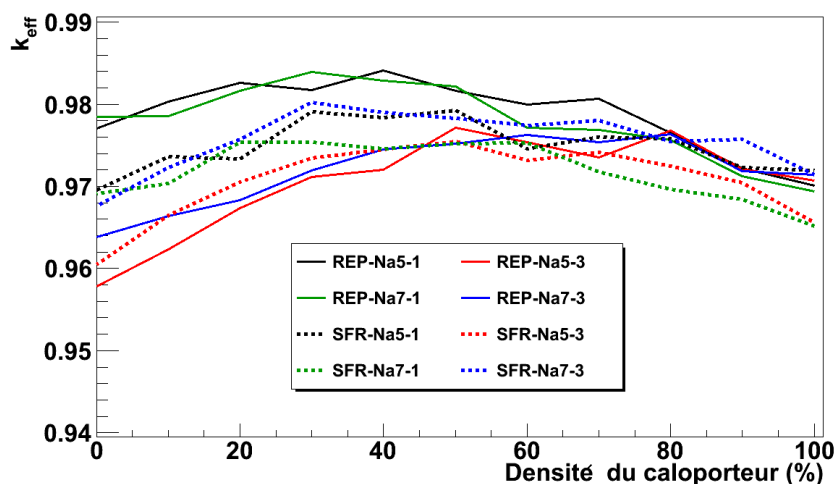


Figure A.1: Coefficient de multiplicité en fonction du pourcentage de la densité du caloporteur en fonctionnement normal, d'un ADS MUST à caloporteur sodium en début de cycle, pour différentes filières.

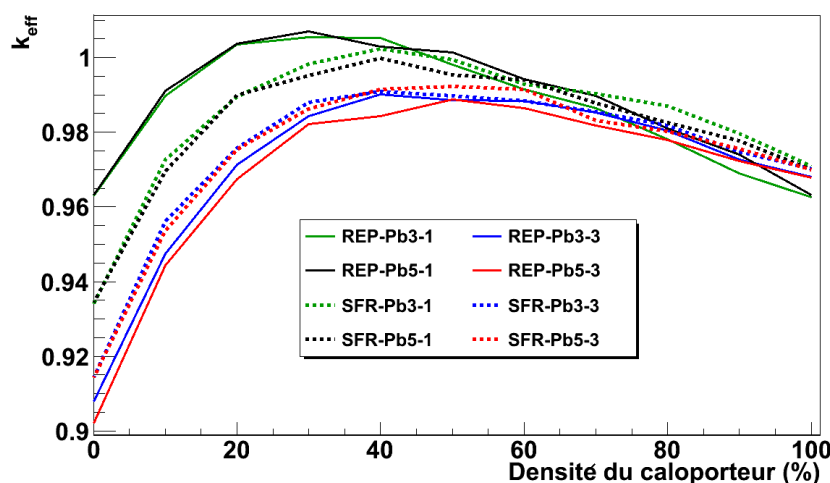


Figure A.2: Coefficient de multiplicité en fonction du pourcentage de la densité du caloporteur en fonctionnement normal, d'un ADS MUST à caloporteur plomb en début de cycle, pour différentes filières.

Ce comportement s'explique par la modification du bilan neutronique. La diminution du caloporteur provoque un changement du spectre au sein du cœur. Les neutrons sont moins diffusés par les noyaux du fluide de plus faible densité, donc le flux se durcit. Par conséquent, les interactions induites par les neutrons ou leur probabilité de sortir du système évoluent.

Comme le montrent les tableaux A.3 et A.4, dans un premier temps le taux de capture (τ_c) diminue plus rapidement que l'augmentation des fuites (τ_e). La part manquante provoque alors des fissions. Or, d'après l'équation 1.3, même si l'augmentation du nombre de fissions est faible, il est multiplié par le nombre moyen de neutrons émis par fission (ν), lors du calcul du k_{eff} . La variation du taux de fission a donc un impact sur le coefficient de multiplication.

Même si la forme des courbes pour les ADS MUST se ressemblent, les échelles de variations sont très différentes suivant le caloporteur. Les coefficients de multiplication pour des réacteurs au sodium sont tous compris entre 0.958 et 0.985. Pour les réacteurs au plomb, ils sont dans un intervalle de 0.9 à 1.05, donc l'effet de la perte de caloporteur a des conséquences bien plus importantes en terme de réactivité.

Le maintien de la sous-criticité du réacteur lors d'une vidange partielle ou totale est indispensable. Tous les ADS au sodium respectent cette contrainte. Même si leur k_{eff} peut augmenter de près de 0.015 suivant le combustible utilisé. Par contre, le constat est nettement plus défavorable pour les concepts au plomb. L'élévation du coefficient de multiplication est de l'ordre de 0.02 à 0.09 suivant la filière de l'ADS. Certains ADS MUST au plomb peuvent donc devenir sur-critiques en cas de vidange partielle. Il est donc indispensable de garder une marge de fonctionnement suffisante afin d'assurer le maintien de la sous-criticité du cœur lors d'une perte

Densité Na	k_{eff}	τ_c (%)	τ_e (%)	τ_f (%)	$\tau_{n,2n}$ (%)	ν
100	0.97005	59.51	9.56	30.91	0.03	3.14
90	0.97218	58.77	10.30	30.90	0.03	3.14
80	0.97655	58.00	10.95	31.02	0.03	3.15
70	0.98071	57.10	11.81	31.06	0.03	3.15
60	0.97998	55.89	12.96	31.13	0.03	3.15
50	0.98166	54.82	14.02	31.13	0.03	3.15
40	0.98414	53.79	15.07	31.11	0.03	3.16
30	0.98177	52.56	16.39	31.02	0.03	3.16
20	0.98263	51.06	17.73	31.19	0.03	3.15
10	0.98036	49.55	19.55	30.87	0.03	3.17
0	0.97702	47.74	21.32	30.90	0.04	3.16

Tableau A.3: Exemple de la répartition des interactions neutroniques et du nombre moyen de neutrons émis par fission pour différents pourcentages de densité du caloporteur d'un ADS MUST à caloporteur sodium en début de cycle.

Densité Pb	k_{eff}	τ_c (%)	τ_e (%)	τ_f (%)	$\tau_{n,2n}$ (%)	ν
100	0.96252	62.53	5.95	31.35	0.17	3.05
90	0.96891	61.62	6.73	31.50	0.15	3.06
80	0.97816	60.49	7.62	31.73	0.15	3.07
70	0.98653	59.11	8.78	31.97	0.15	3.07
60	0.99141	57.80	10.10	31.96	0.14	3.09
50	0.99805	55.95	11.58	32.33	0.14	3.07
40	1.00522	53.88	13.56	32.45	0.12	3.09
30	1.0055	51.31	16.09	32.49	0.11	3.08
20	1.00347	47.79	19.88	32.23	0.10	3.10
10	0.98969	43.14	25.03	31.77	0.06	3.11
0	0.96306	36.63	32.68	30.65	0.04	3.14

Tableau A.4: Exemple de la répartition des interactions neutroniques et du nombre moyen de neutrons émis par fission pour différents pourcentages de densité du caloporteur d'un ADS MUST à caloporteur plomb en début de cycle.

partielle de caloporteur.

Lors d'une vidange totale, ce sont les réacteurs au plomb dont le comportement est le plus favorable en terme de réactivité avec des k_{eff} tous équivalents, voir même très inférieurs à celui de fonctionnement. Les coefficients de multiplicité des concepts au sodium sont par contre supérieurs de 0.008 pour les combustibles de transmutation de l'américium seul issu de REP. Les autres systèmes ont généralement un k_{eff} du même ordre que celui de fonctionnement ou légèrement plus faible. La vidange totale des cœurs a donc soit un impact relativement faible sur le k_{eff} , soit elle peut le faire fortement chuter dans certains cas.

Annexe B

Estimation de l'erreur d'une évolution globale du combustible

Pour estimer l'erreur faite sur l'évolution du combustible, nous allons étudier l'évolution de l'ADS MUST de la filière REP-95Na5-3.

B.1 Propagation de l'erreur statistique

Dans un premier temps, nous pouvons estimer la propagation de l'erreur statistique lors de l'évolution. Pour cela, nous simulons avec le programme MURE, dix évolutions du combustible de l'ADS MUST de la filière REP-95Na5-3 avec des graines de nombres aléatoires différentes. L'objectif est alors d'estimer l'écart des résultats obtenus.

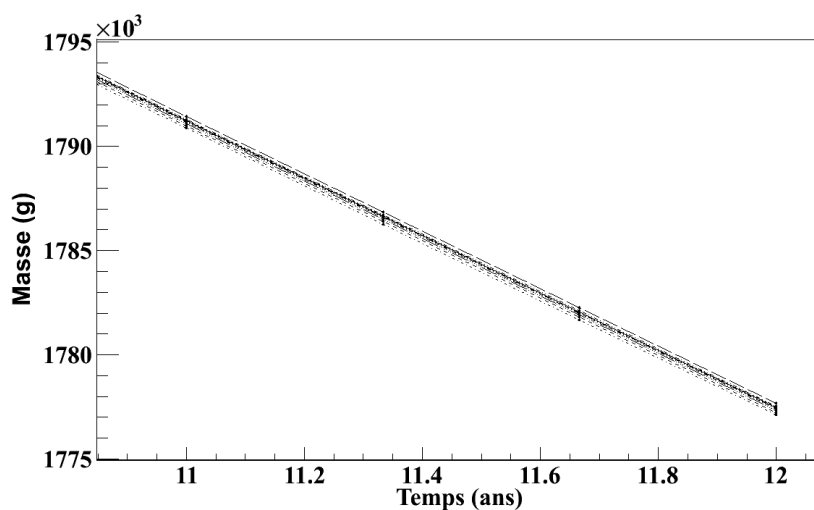


Figure B.1: Évolutions de la masse du ^{238}Pu en fin de cycle obtenues avec dix graines de nombres aléatoires différentes.

Les figures B.1 et B.2 représentent les masses de ^{238}Pu et d' ^{241}Am en fin cycle pour les dix évolutions calculées. Ces deux exemples montrent de faibles variations des valeurs obtenues pour chaque isotope. Les écarts entre les résultats extrêmes en fin de cycle sont inférieurs à 0.1 %.

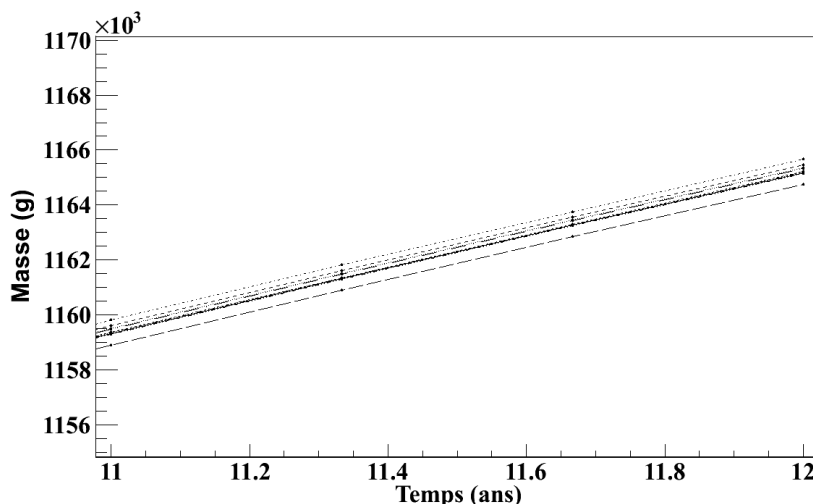


Figure B.2: Évolutions de la masse d' ^{241}Am en fin de cycle obtenues avec dix graines de nombres aléatoires différentes.

La propagation de l'erreur statistique est donc relativement faible et pourrait être encore améliorée mais cela implique une augmentation des temps de calcul.

B.2 Évolution de l'ensemble du combustible ou par zone de flux neutronique

Les simulations d'évolution du combustible présentées dans le chapitre 5 ont été réalisées à partir du flux neutronique intégré sur l'ensemble du combustible. Ainsi, les résultats obtenus correspondent à l'évolution globale du système et ne donnent pas accès aux informations locales. Or, nous avons observé une certaine hétérogénéité du flux neutronique dans le cœur et par conséquent l'évolution du combustible diffère en fonction de sa position.

De plus, les calculs d'évolution ont été effectués avec une source critique. Mais, nous avons mis en évidence des différences entre la distribution spatiale du flux neutronique obtenue avec une source critique et une source de protons simulant la réaction de spallation (voir partie 3.5).

Nous allons donc essayer d'évaluer le biais résultant du calcul d'évolution du cœur complet avec une source critique.

La première étape de cette étude est d'extraire la distribution du flux neutronique dans le cœur intégré sur toute sa hauteur afin de calculer la valeur moyenne du flux dans les différents assemblages.

Pour cela, une simulation de l'ADS MUST est effectuée avec le code MCNPX et le combustible utilisé pour le calcul d'évolution dans le chapitre 5. Les particules sources utilisées sont des protons de 1 GeV monodirectionnels dirigés vers les cibles de spallation et répartis de manière égale vers chacune d'elles. Une discrétisation selon le plan axial est appliquée, avec un réseau cartésien dont les éléments sont des parallélépipèdes à base carrée de 1 cm d'arête et de 120 cm de hauteur.

Nous obtenons ainsi la cartographie du flux neutronique dans le cœur correspondant à la figure B.3.

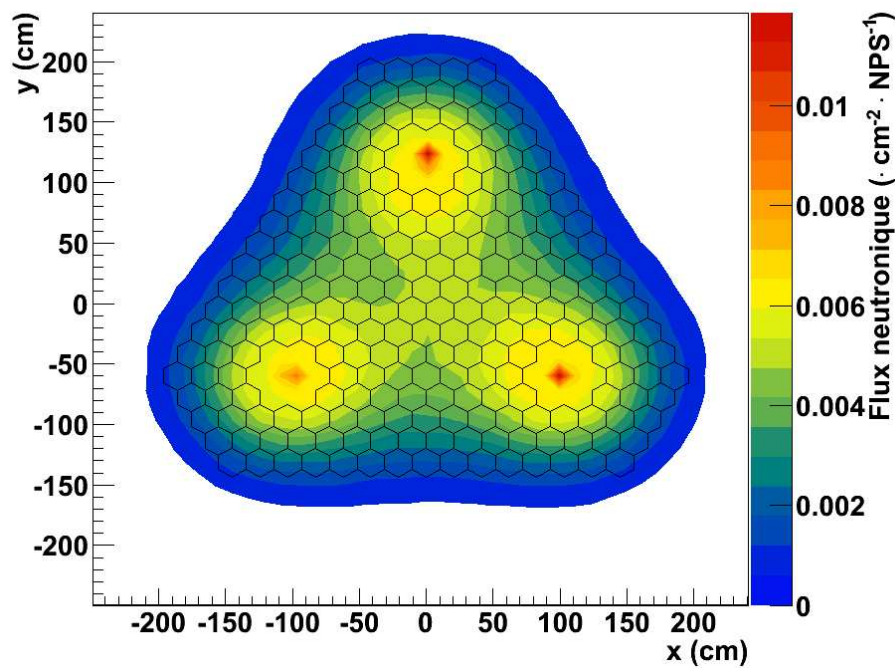


Figure B.3: Flux neutronique normalisé par proton source et intégré sur toute la hauteur du cœur de l'ADS MUST de la filière REP-95Na5-3.

Nous déterminons à partir de cette distribution, la valeur moyenne du flux neutronique dans chaque assemblage de combustible ϕ_i , ainsi que la valeur moyenne du flux neutronique dans l'ensemble du cœur ϕ_m . Ensuite, nous allons chercher à prendre en compte trois zones de flux neutroniques différentes, pour essayer de prendre en compte les différences spatiales observées. Il serait bien sûr possible d'en définir un plus grand nombre.

Nous appliquons alors deux critères permettant de classer les assemblages en fonction de leur flux neutronique moyen. La zone de flux neutronique d'un assemblage i est déterminée par

les conditions suivantes :

- Zone 1 : $\phi_i \geq 1.3 \cdot \phi_m$
- Zone 2 : $0.7 \cdot \phi_m < \phi_i < 1.3 \cdot \phi_m$
- Zone 3 : $\phi_i \leq 0.7 \cdot \phi_m$

Nous obtenons ainsi 57 assemblages correspondant à la première zone, 107 dans la deuxième et 61 dans la troisième.

Pour réaliser une simulation d'évolution d'un assemblage représentatif de chacune des zones avec le programme MURE, il faut déterminer la puissance libérée par ce dernier. Pour cela, nous calculons le rapport de la somme des flux neutroniques ϕ_j moyen des assemblages de la zone j et la somme des ϕ_i de tous les assemblages de combustible du cœur. Nous obtenons ainsi, avec l'équation B.2, un facteur F_z pour les trois régions.

$$F_z = \frac{\sum_j \phi_j}{\sum_i \phi_i} \quad (\text{B.1})$$

La puissance représentative d'un assemblage d'une zone est alors déterminée avec l'expression :

$$P_z = \frac{P}{N_z} F_z \quad (\text{B.2})$$

Dans cette relation, P est la puissance du cœur utilisée lors de la simulation d'évolution de l'ADS et N_z est le nombre d'assemblages correspondant à la région étudiée.

Nous réalisons, ensuite, un calcul d'évolution du combustible d'un assemblage représentant chaque zone, avec le programme MURE. Un assemblage aux surfaces radiales réfléchissantes est simulé avec la puissance P_z correspondante.

À partir des résultats obtenus, les masses totales dans le cœur des différents isotopes, en fin de cycle, sont déterminées. Pour cela, les masses isotopiques finales contenues dans chacun des assemblages simulés sont multipliées par le nombre d'assemblages de la zone de flux neutronique correspondante. Puis, la somme des masses isotopiques de chaque région est calculée pour déterminer les valeurs pour l'ensemble du cœur.

Les résultats obtenus sont recensés dans le tableau B.1. Ils montrent des différences entre les deux méthodes de simulation d'évolution de l'ordre de quelques pour cent. Les calculs d'évolution globale du cœur avec une source critique donnent donc des résultats raisonnables comparés à ceux prenant en compte trois zones de flux.

Isotopes	m_Z (g)	m_G (g)	Écart (%)
^{234}U	$6.66 \cdot 10^5$	$6.73 \cdot 10^5$	0.99
^{235}U	$1.28 \cdot 10^5$	$1.25 \cdot 10^5$	3.03
^{236}U	$1.20 \cdot 10^5$	$1.19 \cdot 10^5$	0.75
^{237}Np	$5.51 \cdot 10^5$	$5.61 \cdot 10^5$	1.70
^{238}Pu	$1.79 \cdot 10^6$	$1.78 \cdot 10^6$	0.43
^{239}Pu	$5.61 \cdot 10^5$	$5.53 \cdot 10^5$	1.52
^{240}Pu	$1.82 \cdot 10^6$	$1.83 \cdot 10^6$	0.15
^{241}Pu	$1.64 \cdot 10^5$	$1.56 \cdot 10^5$	4.81
^{242}Pu	$9.33 \cdot 10^4$	$9.02 \cdot 10^4$	3.35
^{241}Am	$1.16 \cdot 10^6$	$1.17 \cdot 10^6$	0.83
^{243}Am	$9.22 \cdot 10^5$	$9.44 \cdot 10^5$	2.38
^{244}Cm	$8.02 \cdot 10^5$	$7.97 \cdot 10^5$	0.67
^{245}Cm	$2.58 \cdot 10^5$	$2.48 \cdot 10^5$	3.79
^{246}Cm	$1.44 \cdot 10^5$	$1.42 \cdot 10^5$	1.44

Tableau B.1: Masses en fin de cycle des isotopes les plus abondants dans le combustible d'un ADS MUST de la filière REP-95Na5-3. Les masses obtenues en définissant 3 zones de flux neutroniques sont notées m_Z et celles obtenues avec un calcul d'évolution globale du cœur m_G . La dernière colonne est l'écart entre les deux masses. Seuls les isotopes présents à plus de 1 % en fin de cycle sont recensés dans ce tableau.

Bibliographie

- [1] IEA. Key World Energy Statistics, 2011. [ix](#), [5](#), [6](#), [7](#), [8](#)
- [2] Bernstein Lenny and al. Bilan 2007 des changements climatiques : Rapport de synthèse. Technical report, GIEC, 2007. [8](#)
- [3] BP. BP Statistical Review of World Energy June 2012, 2012. [8](#)
- [4] Uranium 2011 Resources, Production and Demand. Technical report, NEA - IAEA, 2012. [8](#), [9](#)
- [5] World Population Prospects The 2010 Revision. Technical report, United Nations - DESA, 2011. [9](#)
- [6] CEA. Mémento sur l'énergie, 2011. [9](#), [23](#)
- [7] Dautray Robert, Friedel Jacques, and Yves Bréchet. Réflexions sur l'avenir de l'énergie nucléaire, de la France d'aujourd'hui au monde de demain : IIe à IVe générations. *Académie des sciences*, 13 :480 – 518, 2012. [10](#)
- [8] IEA. [http ://www.iea.org/stats/electricitydata](http://www.iea.org/stats/electricitydata), 2009. [10](#)
- [9] Kerkar Nordine and Paulin Philippe. *Exploitation des coeurs REP*. Génie Atomique, 2008. [13](#), [14](#)
- [10] Chadwick M B and al. ENDF/B-VII Nuclear Data for Science and Technology : Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data. *Nuclear Data Sheets*, vol 112, 2011. [ix](#), [xi](#), [xiii](#), [14](#), [27](#), [46](#), [47](#), [58](#), [83](#), [84](#), [114](#), [115](#)
- [11] CEA. Quatrième génération : vers un nucléaire durable. *Dossier de presse*, 2010. [15](#)
- [12] GIF R&D Outlook for Generation IV Nuclear Energy Systems. Technical report, GIF, 2009. [15](#)
- [13] ANDRA. [http ://www.andra.fr/](http://www.andra.fr/). [ix](#), [16](#)
- [14] ANDRA. Rapport de synthèse. Technical report, ANDRA, 2009. [16](#)

- [15] <http://www.legifrance.gouv.fr/>. 19, 20
- [16] Dossier 2005 argile - tome évaluation de sûreté du stockage géologique. Technical report, ANDRA, 2005. 20, 25
- [17] Stockage réversible profond - Proposition d'une zone d'intérêt pour la reconnaissance approfondie et de scénarios d'implantation en surface. Technical report, ANDRA, 2009. 20
- [18] Devezeaux De Lavergne Jean-Guy and Maurin Guy. *Entreposage des déchets et des combustibles usés*. 2010. 23
- [19] Guillaumont Robert. *Déchets radioactifs. Gestion par stockage géologique*. 2010. 25
- [20] Varaine Frédéric. Processus et faisabilité de la transmutation des déchets nucléaires à vie longue. In *Ecole Joliot-Curie de Physique Nucléaire - Le cycle électronucléaire : De la fission aux nouvelles filières*, 2006. 27, 28
- [21] Zanini L, David J C, Yu Konobeyev A, Panebianco S, and Thiollière N. Neutronic and Nuclear Post-Test Analysis of MEGAPIE. *PSI*, 2008. 30, 92
- [22] Billebaud A. Réacteurs hybrides : avancées récentes pour un démonstrateur. In *Ecole Joliot-Curie de Physique Nucléaire - Le cycle électronucléaire : De la fission aux nouvelles filières*. Ecole Joliot Curie, 2006. 30, 32
- [23] Furukawa K and al. Thorium molten salt nuclear energy synergetics. *Journal of Nuclear Science and Technology* 27, 27 :1157 – 1178, 1990. 31
- [24] Bowman C D and al. Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation using an Accelerator-Driven Intense Thermal Neutron Source. *Nuclear Instruments and Methods*, A320 :336 – 367, 1992. 31
- [25] Rubbia C. A High Gain Energy Amplifier Operated with Fast Neutrons. In *AIP Conference Proceedings 346, International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications*, Las Vegas, USA, juillet 1994. 31
- [26] Rubbia C and al. Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier, 29 September 1995. 31
- [27] Baeten P and al. The GUINEVERE project at the VENUS-F facility. In *European Nuclear Conference 2010*, Barcelone, Espagne, 2010. 32
- [28] GUINEVERE : vers une energie nucleaire plus propre. In *Conférence de presse*, 11 janvier 2012. 32

- [29] Ait Abderrahim Hamid and D'Hondt Pierre. A European Experimental ADS for R&D Applications Status at Mid-2005 and Prospective towards implementation. *NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY*, Vol. 44, No 3 :491–498, 2007. [32](#)
- [30] *EFIT : The European Facility For Industrial Transmutation of minor actinide*, Pocatello, Idaho, USA, 2007. ACCAPP'07. [32](#), [127](#)
- [31] Artioli C and al. Optimization of the minor actinides transmutation in ADS : the European Facility for Industrial Transmutation EFIT-Pb concept. ACCAPP'07, July 30 - August 2 2007. [32](#), [33](#), [36](#), [82](#), [92](#), [198](#)
- [32] Evaluation technico-economique des options de transmutation. Rapport d'étape - Note de synthèse. Technical report, CEA, Septembre 2010. [32](#), [33](#), [39](#), [42](#), [84](#)
- [33] Delpech M and al. Multirecyclage de plutonium en REP et RNR - impact réacteur et scénarios. Note technique, CEA /DRN/DER/SPRC/LEDC/96-461, 1996. [xvii](#), [33](#), [40](#)
- [34] Rimpault Gérard, Buiron Laurent, Sciora Pierre, and Varaine Frédéric. Towards GEN IV SFR design : Promising ideas for large advanced SFR Core Designs. In *International Conference on the Physics of Reactors "Nuclear Power : A Sustainable Resource"*. PHY-SOR'08, Interlaken, Switzerland, Septembre 2008. [33](#), [82](#), [84](#), [90](#), [98](#), [125](#), [200](#)
- [35] WALLENIIUS Janne. *Physics of Americium Transmutation*, volume 44. Mars 2012. [33](#), [198](#)
- [36] Adamov E and al. The next generation of fast reactors. *Nuclear Engineering and Design*, 173 :143–150, 1997. [34](#), [82](#), [84](#), [91](#)
- [37] Biarotte J-L. Communication privée. [37](#)
- [38] Brizi J. *Cycles uranium et thorium en réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Aspects neutroniques et d'échets associés*. PhD thesis, Université Paris XI - Orsay, 2010. [xvii](#), [40](#), [90](#)
- [39] Briesmeister J F. *MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code - Version 4C*. Los Alamos National Laboratory, la-13709-m edition, 2000. [43](#)
- [40] Pelowitz. *MCNPX user's manual - version 2.5.0*, 2005. [43](#)
- [41] Watt B, E. Energy Spectrum of Neutrons from Thermal Fission of U235. *Phys. Rev.*, 87 :1037 – 1041, 1952. [45](#), [46](#)
- [42] Shibata K and al. Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3 : JENDL-3.3. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 39 :1125 – 1136, 2002. [46](#)

- [43] Santamarina et al. A. The JEFF-3.1.1 Nuclear Data Library. Technical report, OCDE - NEA, 2009. [46](#)
- [44] Mashnik S G and Sierk A J. CEM2k : Recent Developments in CEM. In *Proc. 4th Int. Topl. Mtg. Nucl. Applications and Accelerator Technology (AccApp 2000)*, pages 328 – 341, Washington, D.C., 2000. [47](#)
- [45] Bertini H W. Intranuclear-Cascade Calculation of the Secondary Nucleon Spectra from Nucleon-Nucleus Interactions in the Energy Range 340 to 2900 MeV and Comparisons with Experiment. *Physical Review*, 188 :1711, 1969. [47](#)
- [46] Boudard A and al. Intranuclear Cascade Model for a Comprehensive Description of Spallation Reaction Data. *Physical Review C*, 66, 2002. [47](#)
- [47] Yariv Y and Fraenkel Z. Intranuclear Cascade Calculation of High-Energy Heavy-Ion Interactions. *Physical Review C*, 20 :2227, 1979. [47](#)
- [48] Dresner L. EVAP : A Fortran Program for Calculating the Evaporation of Various Particles from Excited Compound Nuclei. In *ORNL-TM-196*. Oak Ridge National Laboratory, 1962. [47](#)
- [49] Junghans A R and al. Projectile-Fragment Yields as a Probe for the Collective Enhancement in the Nuclear Level Density. *Nuclear Physics A*, 629 :635, 1998. [47](#)
- [50] David J C and al. Benchmark Calculations on Residue Production Within the EURISOL DS Project, Part I : Thin Targets. In *DAPNIA-07-59*. CEA Saclay, 2006. [47](#)
- [51] David J C and al. Benchmark Calculations on Residue Production Within the EURISOL DS Project, Part II : Thick Targets. In *DAPNIA-07-04*. CEA Saclay, 2007. [47](#)
- [52] Meplan Olivier and al. MURE, MCNP Utility for Reactor Evolution : couples Monte Carlo transport with fuel burnup calculations. *Computer Program Services of OECD Nuclear Energy Agency*, 2009. [47](#)
- [53] CERN. <http://root.cern.ch>. [50](#)
- [54] ICRP, editor. *Age-dependent dose to members of the public from intake of radionuclides : Part 5 compilation of ingestion and inhalation dose coefficients*. Annals of the ICRP, 1996. [50](#), [186](#)
- [55] Capellan Nicolas. *Couplage 3D neutronique thermohydraulique. Développement d'outils pour les études de sûreté des réacteurs innovants*. PhD thesis, Université Paris XI - Orsay, novembre 2009. [52](#)

- [56] Capellan Nicolas and al. 3D coupling of Monte Carlo neutronics and thermal-hydraulics calculations as a simulation tool for innovative reactor concepts. GLOBAL, 2009. Paper 9274. [52](#)
- [57] Basile D and Salina E. COBRA-EN an upgraded version of the COBRA-3C/MIT code for thermal-hydraulic transient analysis of light water reactor fuel assemblies and cores. Milan, 1999. ENEL-CRTN. [52](#)
- [58] Bailly Henri, Menessier Denise, and Prunier. Claude. Le combustible nucléaire des réacteurs a eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides - conception et comportement, 1996. [53](#)
- [59] Massara Simone and al. Prospective scenarios of nuclear energy evolution on the XX1st century over the world scale. *Nuclear Engineering and Design*, 239 :1708 – 1717, 2009. [64](#)
- [60] Grouiller J P and al. Cossi, a simulation software for a pool of reactors and fuel cycle plants. In *Fast reactors and related fuel cycles*, Kyoto, Japon, 1991. [65](#)
- [61] Vidal J M and al. CESAR5.3 : an industrial tool for nuclear fuel and waste characterization with associated qualification. In *WM 2012 Conference*, Phoenix, USA, 2012. [65](#)
- [62] Mougnot Baptiste, Clavel Jean-Baptiste, and Thiollière Nicolas. CLASS, a new tool for nuclear scenarios : Description & First Application. *International Journal of Engineering and Physical Sciences*, 6 :52, 2012. [65](#)
- [63] Status of Minor Actinide Fuel Development. Technical Report No. NF-T-4.6, AIEA Nuclear Energy Series, july 2009. [82](#)
- [64] Maschek W and al. Accelerator driven systems for transmutation : Fuel development, design and safety. *Progress in Nuclear Energy*, 50 :333 – 340, 2008. [82](#)
- [65] Wallenius J. Neutronic aspects of inert matrix fuels for application in ADS. *Journal of Nuclear Materials*, 320 :142 – 146, 2003. [82](#)
- [66] Pillon Sylvie and Warin Dominique. *Combustibles et cibles pour la transmutation de déchets radioactifs HAVL*, volume BN3645. 2010. [82](#)
- [67] Slifka A J, Filla B J, and Phelps J M. Thermal conductivity of magnesium oxide from absolute, steady-state measurements. *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, 103(4) :357, 1998. [xi](#), [83](#)
- [68] Popov S G and al. Thermophysical properties of MOX and UO₂ fuels including the effects of irradiation. Technical report, Oak Ridge National Laboratory, 2000. [xi](#), [83](#)

- [69] Sobolev V. Thermophysical properties of NpO_2 , AmO_2 and CmO_2 . *Journal of Nuclear Materials*, 389 :45 – 51, 2009. [xi](#), [83](#)
- [70] Filliatrea P and al. In vessel neutron instrumentation for sodium-cooled fast reactors : Type, lifetime and location. *Annals of Nuclear Energy*, 37 :1435 – 1442, 2010. [84](#)
- [71] Boullis B. Le programme transmutation, enjeux et limites. Les enjeux de la transmutation, Commission Nationale d’Evaluation, Paris, 18 décembre 2008. [84](#)
- [72] Lescoat M L and al. Amorphization of oxides in ODS materials under low and high energy ion irradiations. *Journal of Nuclear Materials*, 2011. [91](#)
- [73] Cheon Jin Sik and al. Sodium fast reactor evaluation : Core materials. *Journal of Nuclear Materials*, 392 :324 – 330, 2009. [91](#)
- [74] Carbajo J J and al. A review of the thermophysical properties of MOX and UO_2 fuels. *Journal of Nuclear Materials*, 299 :181 – 198, 2001. [xii](#), [97](#)
- [75] Yamashita T and al. Thermal expansions of NpO_2 and some other actinide dioxides. *Journal of nuclear materials*, 245(1) :72 – 78, 1997. [xii](#), [97](#)
- [76] Sobolev V. Thermophysical properties of NpO_2 , AmO_2 and CmO_2 . *Journal of Nuclear Materials*, 389 :45 – 51, 2009. [xii](#), [97](#)
- [77] Chawla T C and al. Thermophysical properties of MgO , UO_2 , their eutectic solution and slurry of liquid-solid mixtures, concrete, sodium, stainless steel and debris beds for use in molten pool penetration of MgO substrate. *Nuclear Engineering and Design*, 80 :65 – 77, 1984. [xii](#), [97](#)
- [78] Rimpault Gérald. La puissance unitaire des concepts ADS : impact sur les performances et la faisabilité (ads). GEDEPEON, Mai 2006. [98](#)
- [79] Buiron L, Blanchet D, and Stauff N. Presentation of the Benchmark for the Sodium Fast Reactor Task Force. Wprs expert group on reactor physics and advanced nuclear systems, NEA, Nice, France, Mai 2011. [108](#)
- [80] Steinbrück Martin. Oxidation of boron carbide at high temperatures. *Journal of Nuclear Materials*, 336 :185–193, 2005. [108](#)
- [81] Petrazzini M and al. Main Components Functional Sizing of EFIT. Technical report, EUROTRANS, 2008. ANSALDO EUROTRANS 121 SMFX 007 Rev. 1. [125](#)
- [82] Tucek Kamil, Carlsson Johan, and Wider Hartmut. Comparison of sodium and lead-cooled fast reactors regarding reactor physics aspects, severe safety and economical issues. *Nuclear Engineering and Design*, 236 :1589 – 1598, 2006. [125](#)

- [83] Bakker K and Konings R J M. On the thermal conductivity of inert-matrix fuels containing americium oxide. *Journal of Nuclear Materials*, 254 :129 – 134, 1998. [125](#)
- [84] Capellan Nicolas. Communication privée. [126](#)
- [85] BILLEBAUD Annick and NIFENECKER Hervé. *Réacteurs hybrides*. 2010. BN 3 235. [198](#)
- [86] Bays S. Heterogeneous Transmutation Sodium Fast Reactor. Technical report, Idaho National Laboratory (INL), Septembre 2007. INL/EXT-07-13252. [198](#)
- [87] Reus Paul. *Précis de neutronics*. 2003. [199](#)
- [88] Sarotto M and al. Specification for the EFIT Core and fuel element. Technical report, EUROTRANS, 2008. [200](#)

Jean-Baptiste Clavel

Étude de systèmes et scénarios électronucléaires double strate de transmutation des actinides mineurs en ADS

Study of nuclear energy systems and double strata scenarios for minor actinides transmutation in ADS

Résumé

La loi française du 28 juin 2006, sur la gestion des déchets radioactifs, demande une évaluation pour définir la future stratégie industrielle. L'étude présentée ici, concerne plus spécifiquement l'axe de recherche sur la transmutation des actinides mineurs.

Dans ce but, un concept d'ADS (Accelerator Driven System) de haute puissance a été développé à SUBATECH. Dans ce réacteur sous-critique, un faisceau de protons de 1 GeV alimente trois cibles de spallation de plomb-bismuth. L'ADS MUST (Multiple Spallation Target) peut ainsi atteindre une puissance thermique de plus de 1 GW avec une densité de puissance élevée.

Une méthode de dimensionnement de ces réacteurs a été développée et appliquée pour différents scénarios double strate. Dans ces scénarios, des réacteurs électrogènes de type SFR (Sodium Fast Reactors) ou REP (Réacteurs à Eau Pressurisée) produisent des actinides mineurs destinés à être transmutés en ADS. Dans chaque cœur, un multi-recyclage du plutonium est réalisé et dans les réacteurs sous-critiques les éléments à transmuter le sont également. Pour limiter la réactivité du cœur et améliorer la conductivité thermique, le combustible contenant les actinides mineurs est mélangé à une matrice inerte de MgO. Des filières, avec des ADS à caloporteurs plomb et sodium, ont été étudiées pour différentes durées d'irradiation, et deux stratégies de transmutation : soit l'ensemble des actinides mineurs, soit seulement l'américium est incinéré.

Le dimensionnement des ADS MUST de chaque filière et de leur combustible à l'équilibre est présenté dans cette thèse. Puis l'évolution du combustible et du coefficient de multiplication, sur un cycle, est réalisée et analysée. La radiotoxicité et la puissance thermique des déchets produits sont ensuite comparées. Enfin, l'étude de scénarios double strate est effectuée afin d'analyser les inventaires d'actinides mineurs et de plutonium en cycle, ainsi que les déchets produits en fonction de la stratégie de transmutation adoptées et de l'évolution de la première strate.

Mots clés

ADS, MUST, scénario, double strate, actinide mineur, transmutation, MURE, ACDC, CLASS-----

Abstract

The French law of 28th June 2006 regarding advanced nuclear waste management requires a scientific assessment to define future industrial strategies. The present PhD thesis was carried in this framework and concerns specifically the research axis of minor actinides transmutation.

A high power Accelerator Driven System (ADS) concept is developed at SUBATECH for this purpose. A 1 GeV proton beam feeds three liquid lead-bismuth spallation targets. The Multiple Spallation Target (MUST) ADS reaches the thermal powers up to 1 GW with a high specific power.

A nuclear reactor dimensioning method has been developed and applied to different double strata scenarios. In these scenarios, SFR (Sodium Fast Reactors) or PWR (Pressurized Water Reactors) power reactors produce minor actinides that will be transmuted into ADS. In each core (SFR and ADS), the plutonium multi-reprocessing strategy is performed while ADS sub-critical core also multi-reprocesses minor actinides. To limit the core reactivity and improve the fuel thermal conductivity, the minor actinides fuel is mixed with MgO inert matrix. Nuclear branches with lead and sodium coolants for the ADS, have been studied for different irradiation times and two transmutation strategies have been assessed: whether whole minor actinides, whether americium only is transmuted.

The thesis presents precisely the MUST ADS design methodology and the calculations to get a fuel composition at equilibrium. Then a one cycle evolution is performed and analysed for the fuel and the multiplication factor. Radiotoxicity and thermal power of the waste produced are then compared. Finally, the study of double strata scenarios is performed to analyse the plutonium and minor actinides inventories in cycle and also the waste produced according to the transmutation strategies applied and the first stratum evolution.

Key Words

ADS, MUST, scenario, double strata, minor actinide, transmutation, MURE, ACDC, CLASS -----